



**SCHRIFTENREIHE
UMWELT NR. 349**

Gewässerschutz

**Verlagerung
gelöster Stoffe
durch den Boden
ins Grundwasser**



**Bundesamt für
Umwelt, Wald und
Landschaft
BUWAL**

**SCHRIFTENREIHE
UMWELT NR. 349**

Gewässerschutz

**Verlagerung
gelöster Stoffe
durch den Boden
ins Grundwasser**

**Herausgegeben vom Bundesamt
für Umwelt, Wald und Landschaft
BUWAL
Bern, 2004**

Herausgeber

Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft
(BUWAL)

*Das BUWAL ist ein Amt des Eidg. Departements für
Umwelt, Verkehr, Energie und Kommunikation
(UVEK)*

Autor

Dr. Thomas Gimmi, Gruppe Gestein/Wasser-
Wechselwirkung, Institut für Geologie,
Baltzerstrasse 1–3, CH-3012 Bern

Zitiervorschlag

GIMMI, T. 2004: *Verlagerung gelöster Stoffe durch
den Boden ins Grundwasser*. Schriftenreihe Umwelt
Nr. 349. Bundesamt für Umwelt, Wald und Land-
schaft, Bern. 46 S.

Begleitung BUWAL

Dr. Benjamin E. Meylan
BUWAL, Sektion Grundwasserschutz
Dr. Ronald Kozel
BWG, Sektion Hydrogeologie

Gestaltung

Ursula Nöthiger-Koch, 4813 Uerkheim

Titelfoto

Gimmi et al., 1997

Bezug

BUWAL
Dokumentation
CH-3003 Bern
Fax + 41 (0) 31 324 02 16
E-Mail: docu@buwal.admin.ch
Internet: www.buwalshop.ch

Bestellnummer

SRU-349-D

Preis

CHF 10.– (inkl. MWSt)

© BUWAL 2004 4.2004 1000 09055/205

Inhaltsverzeichnis

Abstracts	5	6.4.3 Modellierung des Transports von Pflanzenschutzmitteln	38
Vorwort	7	6.4.4 Unsicherheiten der Modellierung	38
Zusammenfassung	9	7 Schlussfolgerungen	39
1 Einleitung	11	7.1 Hydraulische Eigenschaften von Böden	39
2 Fragestellung	12	7.2 Sorptionsprozesse	40
3 Zielsetzungen	13	7.3 Abbauprozesse	40
4 Relevante Prozesse	14	7.4 Anwendung von PSM in Grundwasserschutzzonen	41
5 Übersicht über Feldstudien zum Ausbreitungsverhalten von Wasser und gelösten Stoffen	17	7.5 Ausblick	41
5.1 Typische Versuchsanordnungen	17	8 Literatur	43
5.1.1 Ereignisorientierte Untersuchungen	17	Verzeichnisse	47
5.1.2 Langzeitbeobachtungen	19	1 Abbildungsverzeichnis	47
5.2 Resultate	19	2 Tabellenverzeichnis	47
5.2.1 Ereignisorientierte Untersuchungen	19		
5.2.2 Langzeitbeobachtungen	25		
5.3 Diskussion	26		
5.3.1 Vergleich mit Niederschlagsdaten	26		
5.3.2 Ursachen von präferenziellem Fluss	28		
5.3.3 Schätzung von Verlagerungszeiten	28		
5.3.4 Anforderungen an ein Transportmodell	29		
5.4 Zusammenfassung	30		
6 Übersicht über bestehende Stofftransportmodelle	31		
6.1 Modellkonzepte	31		
6.1.1 Bewegung des Wassers	31		
6.1.2 Wechselwirkungen mit festen Bodenbestandteilen	33		
6.1.3 Wechselwirkungen mit Organismen	33		
6.2 Aktuelle Stofftransportmodelle	34		
6.3 Vergleiche zwischen Simulationen und Experimenten	34		
6.3.1 Transport nicht reaktiver Stoffe	34		
6.3.2 Transport von Pflanzenschutzmitteln	35		
6.3.3 Unsicherheiten der Modellierung	36		
6.4 Zusammenfassung	37		
6.4.1 Modellkonzepte	37		
6.4.2 Modellierung des Transports nicht reaktiver Stoffe	37		

Abstracts

Keywords:

Solute transport,
Plant protection
products,
Groundwater protection
zone S2

The risk of plant protection products being leached from the soil depends strongly on the way in which water moves within the ground. The present report considers typical flow patterns of water in the undisturbed ground. The phenomenon of «preferred» flow channels may be widely observed, and should therefore be included in analytical models of transport processes. In general, however, the problems involved in measurement and analytical modelling of material flows in the field have not yet been satisfactorily solved.

Stichwörter:

Stoffverlagerung,
Pflanzenschutzmittel,
Grundwasserschutz-
zone S2

Das Risiko eines Austrages von Pflanzenschutzmitteln aus dem Boden hängt stark von der Art und Weise ab, wie Wasser im Boden verlagert wird. Der vorliegende Bericht gibt einen Überblick über typische Fließmuster von Wasser in natürlichen Böden. Es zeigt sich, dass das Phänomen von bevorzugten Fließbahnen weit verbreitet ist und entsprechend bei der Modellierung der Transportvorgänge berücksichtigt werden sollte. Sowohl die Messung als auch die Modellierung von Stoffflüssen im Feld ist indes bis heute ein noch nicht befriedigend gelöstes Problem.

Mots-clés:

Transfer de solutés,
Produits pour le
traitement des plantes,
Zone S2 de protection
des eaux souterraines

Le risque entraîné par un épandage sur le sol de produits pour le traitement des plantes dépend de la manière dont l'eau se déplace dans le sol. Le présent rapport donne un aperçu des modèles typiques de flux des eaux dans les sols naturels. Il s'avère que le phénomène de la préférence pour certaines trajectoires de flux est fort répandu. Il faut en tenir compte lors de la modélisation des processus de transport. A ce jour, le problème de la mesure et de la modélisation des flux de substances sur le terrain n'est pas encore résolu de manière satisfaisante.

Parole chiave:

Flussi delle sostanze,
Prodotti fitosanitari,
Zona di protezione
delle acque sotterranee
S2

Il rischio connesso alla diffusione nel suolo di prodotti fitosanitari dipende molto da come scorrono i flussi d'acqua nel suolo. Il presente rapporto illustra modelli tipici del flusso delle acque nel suolo naturale. Si giunge alla conclusione che il fenomeno delle traiettorie preferenziali rispetto ad altre è molto diffuso. Se ne deve quindi tenere conto nell'elaborazione dei modelli dei flussi di trasporto delle acque. Sino-
ra, sia la misurazione che l'elaborazione sul campo di modelli di flussi di sostanze sono però rimaste prive di una soluzione soddisfacente.

Vorwort

Der Boden spielt für den Schutz der Grundwasservorkommen eine zentrale Rolle. Er stellt gewissermassen die schützende Haut für das darunter liegende Grundwasser dar. Schad- und Schmutzstoffe, welche mit dem Niederschlagswasser einsickern, werden zum grossen Teil vom Boden zurückgehalten beziehungsweise abgebaut.

Bisherigen Modellüberlegungen über das Verhalten von Pflanzenschutzmitteln im Boden lag meist die Annahme zugrunde, dass dieser homogen aufgebaut ist und damit sowohl die Versickerung, wie auch die Rückhalte- und Abbauprozesse weitgehend homogen ablaufen, obwohl seit längerem bekannt ist, dass dies nicht immer zutrifft. Mit dem Argument, dass es sich dabei eher um Ausnahmen handelt, und in Ermangelung von geeigneten einfachen alternativen Modellkonzepten wurde dieser Tatsache in der Praxis oft zu wenig Beachtung geschenkt. Die vorliegende Studie zeigt, auf Grundlage der Literatur, dass die Versickerung in der Regel sehr heterogen erfolgt und Niederschlagswasser sowie allfällig vorhandene Pflanzenschutzmittel durch so genannte präferenzielle Fliesswege – Wurzelkanäle, Wurmgänge und Trockenrisse oder besser leitende Strukturen – sehr schnell und ungehindert in den Untergrund gelangen können.

Überall dort wo Niederschlagswasser über präferenzielle Fliesswege ins Grundwasser gelangt, fällt die Filter- und Schutzfunktion des Bodens für das Grundwasser weg. Diese Erkenntnis hat weit reichende Konsequenzen für den vorsorglichen Grund- und Trinkwasserschutz. Die bisherigen Modellannahmen zum Schadstoffabbau im Boden müssen deshalb kritisch überprüft werden und dem vorsorglichen Schutz des Grundwassers in Bezug auf Pflanzenschutzmittel muss – insbesondere in der Nähe von Trinkwasserfassungen – grössere Bedeutung zugemessen werden.

Die vorliegende Publikation richtet sich in erster Linie an die kantonalen Fachstellen für Gewässerschutz sowie an die landwirtschaftliche Beratung. Sie will auf das ernst zu nehmende Phänomen der präferenziellen Fliesswege aufmerksam machen, welches speziell in der Nähe von Trinkwasserfassungen relevant sein kann. Schadstoffe wie Pflanzenschutzmittel, die dort angewendet werden, können unbemerkt in die Fassung gelangen. Ausserhalb der Grundwasserschutzzonen ist dieses Phänomen für die Trinkwassergewinnung weniger bedeutend, da Pflanzenschutzmittel, die ins Grundwasser gelangen, auf dem Weg zur Fassung eher abgebaut oder genügend verdünnt werden.

Bundesamt für Umwelt,
Wald und Landschaft

Peter Michel
Chef Abteilung Gewässerschutz und Fischerei

Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht gibt anhand von Literaturdaten einen Überblick über typische Fliessmuster von Wasser in Feldböden und über die Prozesse, welche die Verlagerungsgeschwindigkeiten bzw. Verweilzeiten von Pflanzenschutzmitteln in Böden beeinflussen. Daraus lassen sich Anforderungen an ein Modell ableiten, welches den Transport von Pflanzenschutzmitteln (PSM) auf der Feldskala beschreiben kann. Einige bekannte Stofftransportmodelle werden vorgestellt und kommentiert.

Es zeigt sich, dass die Anwendung von PSM in der engeren Schutzzone von Trinkwasserfassungen – wegen der präferenziellen Fliesswege – zu Belastungsspitzen von PSM im Trinkwasser führen kann. Da das Auftreten von präferenziellem Fluss vom Zusammenspiel vieler Faktoren (z.B. Bodenart, aktueller Wassergehalt, Niederschlagsrate, Oberflächenbeschaffenheit) abhängt, ist beim heutigen Kenntnisstand kaum eine Einschränkung auf bestimmte Bodentypen oder generell einzelne Risikofaktoren möglich. Die Anwendung von PSM ausserhalb der Grundwasserschutzzone scheint für die Trinkwassergewinnung weniger problematisch zu sein, da auf dem Weg zur Fassung Abbau und Verdünnung sowohl die Konzentrationen, wie auch die eingetragene Masse, wirksam reduzieren.

Relevante Prozesse – präferenzieller Fluss

Die Verlagerung gelöster PSM ins Grundwasser ist direkt abhängig von der Bewegung des Wassers im Boden und im nicht wassergesättigten Untergrund. Von Bedeutung sind auch die Wechselwirkungen mit festen Bodenbestandteilen (Sorption) sowie mit Organismen.

Im Allgemeinen sickert Wasser recht heterogen durch natürliche Böden. Es gibt Bereiche, die während eines Niederschlagsereignisses kaum durchflossen werden, neben so genannten präferenziellen Fliesswegen, in denen relativ hohe Fliessgeschwindigkeiten auftreten. Dies hat zur Folge, dass Stoffe bereits mit geringen Niederschlagsmengen schnell in grössere Tiefen verfrachtet werden. Tritt bei einem Niederschlagsereignis präferenzieller Fluss auf, so kommt die Rückhaltewirkung durch Sorption kaum zum Tragen.

Die für den Stofftransport relevanten Prozesse sind skalenabhängig. Untersuchungen in kleinen Laborsäulen, in Lysimetern oder im Feld führen damit nicht zwingend zu vergleichbaren Resultaten. Für die Übertragung zwischen verschiedenen Skalen müssen deshalb Skalierungsannahmen getroffen werden.

Felduntersuchungen

Feld- und Lysimeteruntersuchungen zum Ausbreitungsverhalten von Stoffen sind inzwischen recht zahlreich. Durchgeführt wurden dabei teils ereignisorientierte, teils langfristig angelegte Studien. Ereignisorientierte Studien helfen insbesondere,

das Verständnis für die Transportprozesse voranzutreiben, während Langzeitbeobachtungen (Monitoring) eher dem direkten Erfassen problematischer Stoffflüsse oder der Überprüfung von Modellrechnungen dienen.

Die Feldbeobachtungen zeigten, dass präferenzieller Fluss vor allem bei hohen Niederschlagsraten und in lehmigen Böden sehr oft auftritt. Präferenzieller Fluss ist auch für Pflanzenschutzmittel ein relevanter Prozess, denn selbst stark sorbierende Verbindungen wie Phosphat wurden teilweise aus dem Boden ausgewaschen. Während Niederschlagsereignissen kann eine beträchtliche Menge an *Tracern* oder PSM in tiefere Schichten gelangen. Bei PSM wurde beobachtet, dass bei einem Ereignis bis zu 5–10 Prozent der kurz zuvor ausgebrachten Menge ausgewaschen wurde. Über eine ganze Vegetationsperiode sind die ausgewaschenen Mengen vermutlich eher gering (<0.1–1 Prozent). Ist aber der Abbau der Stoffe im Grundwasser gehemmt, können selbst geringe Mengen Probleme bereiten.

Modelluntersuchungen

Zur Beschreibung der Stoffverlagerung im Boden existieren mehrere, unterschiedlich komplexe Modellkonzepte. Einige Modelle sind in der Lage, präferenziellen Fluss nachzubilden. Wird präferenzieller Fluss nicht berücksichtigt, so kann der Transport von *Tracern* in der Regel nicht gut nachvollzogen werden. Die Bedeutung von präferenziellem Fluss variiert jedoch beträchtlich, je nach Bodentyp, Wassersättigungszustand oder Beobachtungsperiode. Noch keineswegs befriedigend kann der Transport von PSM modelliert werden. Dies zeigt, dass das Prozessverständnis, welches bisherigen Modellen zugrunde liegt, noch ungenügend ist.

Offene Fragen

Zahlreiche Fragen sind auch heute noch nicht geklärt. Dazu gehören insbesondere die folgenden:

- Wie können Wasser- und Stoffflüsse im Feld ermittelt werden?
- Wie können Resultate von ereignisorientierten Untersuchungen auf längere Zeiträume mit unterschiedlichen Niederschlagsereignissen und auf grössere räumliche Skalen übertragen werden?
- Welche Modellkonzepte sind geeignet, Feldexperimente gut zu beschreiben und zuverlässige Prognosen zu liefern?

1 Einleitung

Der Boden stellt ein wichtiges Kompartiment im Kreislauf der Stoffe dar. Er ist das hydrologische Bindeglied zwischen der Atmosphäre einerseits sowie der Vegetation und dem Grundwasser anderseits. Dank seiner Struktur mit relativ grossen spezifischen Grenzflächen zwischen Wasser, Luft und Festsubstanz wirkt der Boden als Filter, der gelöste oder gasförmige Stoffe zurückhält oder nur verzögert weitergibt. Für die Versorgung der Pflanzen mit Nährstoffen beispielsweise ist diese Filter- und Speichereigenschaft essenziell. Aufgrund seiner biologischen Aktivität ist der Boden gleichzeitig ein Reaktor, in welchem zahlreiche Umwandlungsprozesse stattfinden. Solche Abbauprozesse verringern die Konzentrationen der wirksamen Substanzen von vielen in der Landwirtschaft verwendeten Hilfsstoffen wie beispielsweise Pflanzenschutzmitteln. Abbauprozesse vermindern aber gleichzeitig auch das Risiko, dass die Stoffe in hohen Konzentrationen aus dem Wurzelbereich ins Grundwasser ausgewaschen werden.

Aus wirtschaftlichen und toxikologischen Gründen sind Pflanzenschutzmittel (PSM) im Grundwasser unerwünscht. Werden PSM (Herbizide, Fungizide usw.) in der Nähe von Grundwasserfassungen ausgebracht, so ist die Verweilzeit im Boden und im Grundwasser möglicherweise so kurz, dass die fraglichen Stoffe nicht aufgenommen oder abgebaut werden können und das gefasste Wasser belastet wird. Dies ist mit ein Grund, weshalb um Trinkwasserfassungen, die im öffentlichen Interesse liegen, Grundwasserschutzzonen ausgeschieden werden müssen. In ihnen ist die Landnutzung eingeschränkt.

Welche Menge der Stoffe, die an der Bodenoberfläche ausgebracht oder natürlich eingewaschen werden, schliesslich durch den Boden ins Grundwasser gelangen, ist abhängig von der Rate, mit der die Umwandlungsprozesse ablaufen, sowie der Verweilzeit im Boden. Letztere wird bestimmt durch die Verlagerungsgeschwindigkeit.

2 Fragestellung

Auslöser für den vorliegenden Bericht war die folgende Frage:

1. *Wie steht es mit der Anwendung von PSM in der engeren Grundwasserschutzzone in Bezug auf mögliche Belastungen des Trinkwassers durch PSM?*

Um die Risiken zu beurteilen, welche mit dem Ausbringen von PSM verbunden sind, muss abgeschätzt werden, wie viel der ausgebrachten Stoffe im Wurzelbereich und in der Pflanze verbleiben oder abgebaut werden, und wie viel ungenutzt in den Untergrund gelangt. Es müssen also die folgenden zwei Fragen beantwortet werden:

2. *Wie schnell werden PSM im Boden verlagert?*

3. *Wie schnell erfolgt der Abbau der PSM im Boden?*

Im Hinblick auf eine Belastung von Trinkwasserfassungen ist das Phänomen des schnellen Transportes durch den Boden und den nicht wassergesättigten Untergrund besonders problematisch. Die Perkolation des Wassers im natürlichen Untergrund erfolgt im allgemeinen recht heterogen. Es gibt Bereiche, die während eines Niederschlagsereignisses kaum durchflossen werden, neben solchen, in denen relativ hohe Fliessgeschwindigkeiten auftreten. Letztere werden in der Fachliteratur als präferenzielle Fliesswege, der Vorgang als präferenzieller Fluss (preferential flow) bezeichnet. Präferenzielle Fliesswege haben zur Folge, dass Stoffe bereits mit geringen Niederschlagsmengen schnell in grössere Tiefen verfrachtet werden können. Der Transport von Stoffen im Boden erfolgt aber nicht nur räumlich, sondern auch zeitlich sehr heterogen: Je nach Sättigungszustand des Bodens und der Intensität eines Niederschlagsereignisses können unterschiedliche Transportmechanismen dominieren. Um quantitative Aussagen zu machen über die Gefährdung von Grundwasserfassungen durch landwirtschaftliche Hilfsstoffe, müssen deshalb ebenso die folgenden Fragen beantwortet werden:

4. *Wie wichtig ist das Phänomen der präferenziellen Fliesswege?*

5. *Welche Faktoren bestimmen die Verweilzeiten und die Abbauraten, d.h. die für die Stoffverlagerung wesentlichen Prozesse?*

Es existiert mittlerweile eine ganze Reihe von Modellen zur Abschätzung des Transportes von Schad- oder Hilfsstoffen durch Böden. Für den praktischen Einsatz sind jedoch lange nicht alle geeignet, sei es, weil sie zu komplex sind oder eben wesentliche Prozesse vernachlässigen. Für den Praktiker stellt sich somit auch die Frage:

6. *Welches Stofftransportmodell soll in einem gegebenen Fall eingesetzt werden?*

3 Zielsetzungen

Der vorliegende Bericht gibt einen Überblick über die Prozesse, welche die Verlagerungsgeschwindigkeiten beziehungsweise Verweilzeiten von PSM im Boden beeinflussen. Damit sollen die oben gestellten Fragen 1, 2, 4 und 5, und teilweise auch 3 beantwortet werden. Aus den Antworten lassen sich Anforderungen an ein Modell ableiten, welches den Transport von PSM auf der Feldskala beschreiben kann. Ein solches wäre geeignet, um die Grundwassergefährdung abzuschätzen. In einem zweiten Teil werden einige bekannte Stofftransportmodelle vorgestellt und im Hinblick auf die Beantwortung der Frage 6 kommentiert. Nicht speziell untersucht werden in diesem Bericht die Abbauraten, welche stark von spezifischen Eigenschaften der PSM abhängen.

4 Relevante Prozesse

Die meisten PSM sind wasserlöslich. Ihr Eintrag in den Untergrund erfolgt durch Niederschläge, nachdem sie – meist bereits in gelöster Form – ausgebracht wurden. Die Verlagerung der PSM in die Tiefe ist direkt abhängig von der Bewegung des Wassers im Boden. Von Bedeutung sind im Weiteren die Wechselwirkungen mit festen Bodenbestandteilen (Sorption) sowie mit Organismen (Abbau). Durch eine Anlagerung (Adsorption) an Bodenpartikel oder eine Aufnahme (Absorption) in organische Bestandteile des Bodens (manchmal auch als «partitioning» bezeichnet) kann die Verlagerung in die Tiefe u.U. stark verzögert werden. Je länger PSM im biologisch aktiven Oberboden verweilen, umso grösser die Chance, dass ungenutzte PSM abgebaut werden. Entsprechend nimmt bei langer Verweildauer die Gefahr einer Auswaschung ab. Der Abbau erfolgt allerdings meist über eine ganze Kette von teilweise unbekannten Zwischenprodukten, die nicht notwendigerweise weniger problematisch sind.

Anhand eines Beispiels sollen die relevanten Prozesse kurz erläutert werden (vgl. Abb. 1): Angenommen, ein PSM werde in einer horizontalen Entfernung x von einer Grundwasserfassung ausgebracht und versickere zunächst vertikal durch den nicht wassergesättigten Untergrund mit einer Ausdehnung z . Bei einem konstanten wasserleitenden Querschnittsanteil von $0.1 \text{ m}^2 \text{ m}^{-2}$ und einer vertikalen Distanz zum Grundwasser (Flurabstand) von $z = 1 \text{ m}$, ist für einen nicht sorbierenden Stoff etwa eine Niederschlagsmenge von 100 mm notwendig, um ihn – ohne dispersive Prozesse – bis zum Grundwasserspiegel zu verlagern. Bei einer sorbierenden Substanz mit einem Retardationsfaktor R_{UZ} von 5 sind 500 mm, d.h. die fünffache Niederschlagsmenge erforderlich, um die Stoffe in die gleiche Tiefe zu verlagern. Diese Menge entspricht etwa $2/3$ eines typischen Jahresnettoniederschlags (Niederschlag minus Evapotranspiration) im Schweizer Mittelland. Die Verweilzeit τ_{UZ} im nicht wassergesättigten Untergrund liegt also in diesem Fall für den sorbierenden Stoff bei etwa 250 Tagen. Bei einer Grundwassergeschwindigkeit v_{GW} von 1 m d^{-1} , einem etwas geringeren Retardationskoeffizienten im Grundwasser R_{GW} von 2 und einer horizontalen Distanz x von 100 m, beträgt die Verweilzeit τ_{GW} im Grundwasser 200 Tage.

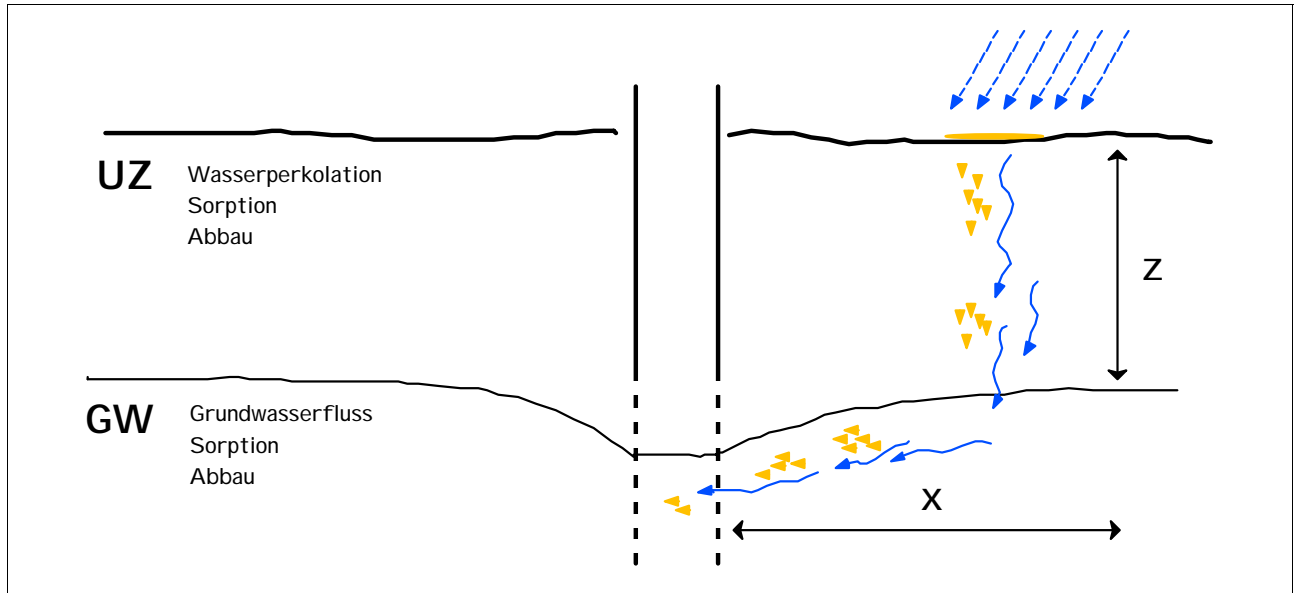


Abb. 1: Relevante Prozesse bei der Verlagerung von reaktiven Stoffen im Bereich eines Grundwasserbrunnens. UZ = nicht gesättigter Untergrund (auch: ungesättigte Zone), GW = Grundwasser.

Diese Verweilzeiten können mit den entsprechenden Halbwertszeiten $\tau_{1/2}$ oder Abbauraten μ der PSM verglichen werden. Die Konzentration des Wassers, das dem Brunnen zufließt, lässt sich schätzen als

$$\frac{C_B}{C_0} = w \exp(-\mu_{UZ}\tau_{UZ} - \mu_{GW}\tau_{GW}),$$

wobei C_0 die Konzentration der ausgebrachten Lösung bezeichnet und w den Anteil an kontaminiertem Grundwasser an der Gesamtmenge, welche dem Brunnen zufließt. Aus einer Halbwertszeit von 30 bis 40 Tagen lässt sich eine Abbaurate $\mu = \ln 2 / \tau_{1/2} \approx 0.03 \text{ d}^{-1}$ berechnen. Erfolgt der Abbau in beiden Kompartimenten (nicht wassergesättigter Untergrund, Grundwasser) gemäss dieser Rate, führt dies bei $w = 1$ zu $C_B / C_0 \approx 1.4 \cdot 10^{-6}$. Die dem Brunnen zufließende Konzentration beträgt somit etwa 0.0014‰ der Ausgangskonzentration. Werden die PSM lediglich in einer Entfernung x von 10 m ausgebracht, erhöht sich die relative Konzentration des dem Grundwasserbrunnen zufließenden Wassers auf etwa 0.3‰. In beiden Fällen handelt es sich um Maximalwerte, da die Aufnahme der PSM vernachlässigt wurde.

Diese Abschätzungen wurden für eine gleichmässige Infiltration des Niederschlags gemacht. Wie erwähnt perkoliert Wasser in natürlichen Böden jedoch recht heterogen. Tritt bei einem Niederschlagsereignis präferenzzieller Fluss entlang von einigen wenigen Fließbahnen auf, ändert dies die Verhältnisse beträchtlich. In diesem Fall ist der wasserleitende Querschnittsanteil wesentlich geringer als der Gesamtwassergehalt. Die Rückhaltewirkung (Retardation) durch Sorption kommt als Folge der

kurzen Kontaktzeit kaum zum Tragen. Angenommen, der wasserleitende Querschnitt betrage lediglich $0.02 \text{ m}^2 \text{ m}^{-2}$ und der Retardationsfaktor $R_{UZ} = 1$, so genügt bereits ein Tagesniederschlag von 20 mm, um Stoffe in eine Tiefe von 1 m zu verfrachten. Die relativen Konzentrationen des zufließenden Wassers betragen in diesem Fall, wiederum für $w=1$ und ohne Berücksichtigung einer Aufnahme durch Wurzeln, bei einer Entfernung $x=100 \text{ m}$ etwa 0.24%, bei $x=10 \text{ m}$ hingegen etwa 53%. Letzteres bedeutet, dass die Ausgangskonzentration lediglich knapp halbiert wird. Selbstverständlich ist natürlich nicht nur die Konzentration, sondern auch die Dauer eines Stoffeintrages wesentlich. Beide zusammen bestimmen letztlich die Gesamtmenge an PSM, die in den Brunnen eingetragen wird.

Umgekehrt lässt sich auch abschätzen, in welcher minimalen Entfernung von einem Brunnen ein Stoffeintrag erfolgen muss, damit die Konzentration des zufließenden Wassers nicht mehr als beispielsweise 0.1‰ der Ausgangskonzentration erreicht:

$$x_{0.0001} = v_{GW} R_{GW}^{-1} (\mu^{-1} \ln[10^4 w] - \tau_{UZ}).$$

Für die Verweilzeiten im nicht wassergesättigten Untergrund von 250 Tagen (homogene Infiltration) oder 1 Tag (präferenzierter Fluss) und die obigen Parameterwerte für das Grundwasser ergeben sich Distanzen $x_{0.0001}$ von etwa 30 m im Falle homogener Infiltration bzw. 150 m bei präferenziellem Fluss.

Diese einfachen Rechnungen können die Realität natürlich nicht korrekt wiedergeben. Sie zeigen aber zweierlei:

- Bei einer gleichmässigen Infiltration des gesamten Jahresniederschlags würden für die gewählten und soweit plausiblen Parameterwerte nur sehr geringe Stoffmengen in den Brunnen gelangen.
- Die Konzentrationen im Brunnen sind aber in hohem Masse abhängig von den Verweilzeiten im nicht wassergesättigten Untergrund. Bei Starkniederschlagsereignissen, die eine schnelle Verlagerung der Stoffe bewirken, können temporär grössere Mengen in den Brunnen gelangen.

Sämtliche relevanten Prozesse, d.h. die Bewegung der Wasserphase, die Sorption und der Abbau, können skalenabhängig sein. Dies heisst, dass je nach Beobachtungsskala andere Prozesse erfasst oder zumindest andere Parameterwerte ermittelt werden. Versuche an kleinen Laborsäulen, mit grösseren Lysimetern oder im Feld führen nicht zwingend zu konsistenten Resultaten. Präferenzierter Fluss beispielsweise wird auf der Skala von Laborsäulen kaum erfasst. Werte für Dispersionskoeffizienten [Gelhar et al., 1985], welche die Verschmierung eines Stoffpulses bestimmen, oder Diffusionsraten [Haggerty und Gorelick, 1998] hängen offenbar ab von der Grösse des beobachteten Systems und der Zeitdauer der jeweiligen Experimente. Um Parameter zu bestimmen oder wichtige Prozesse zu erfassen, sollten Untersuchungen prinzipiell auf der Skala durchgeführt werden, für welche Prognosen erwünscht sind. Leider ist dies in den wenigsten Fällen möglich. Entsprechend gilt es, Resultate mit Hilfe von Skalierungsansätzen auf andere Skalen zu übertragen.

5 Übersicht über Feldstudien zum Ausbreitungsverhalten von Wasser und gelösten Stoffen

Feld- und Lysimeteruntersuchungen zum Ausbreitungsverhalten von PSM oder Markierstoffen sind mittlerweile zahlreich. Generell kann dabei zwischen zwei Untersuchungszielen unterschieden werden:

- In den einen Fällen geht es darum, das Verständnis für die Transportprozesse im nicht wassergesättigten Untergrund voranzutreiben. Derartige Untersuchungen streben hauptsächlich danach, das Wasserfliessregime zu charakterisieren, welches für den Stofftransport von grundlegender Bedeutung ist. Sie sind in der Regel *ereignisorientiert*; d.h., sie versuchen für ein bestimmtes Niederschlagsereignis den Einfluss spezifischer Faktoren – beispielsweise mit *Tracern* – zu erfassen.
- In den anderen Fällen handelt es sich um *langfristige Studien* (Langzeitbeobachtungen), die das Abfluss- und Transportverhalten von PSM oder *Tracern* über eine oder mehrere Vegetationsperioden hinweg beobachten (Monitoring).

5.1 Typische Versuchsanordnungen

5.1.1 Ereignisorientierte Untersuchungen

Meist ist es nicht möglich, den Wasserfluss im Boden direkt zu beobachten. Bei den Untersuchungen werden deshalb Markierstoffe (*Tracer*) eingesetzt, beispielsweise Anionen, Wasserisotope oder Farbstoffe.

Farbstoffe zeigen sehr anschaulich, wo das Wasser fließt. Sie werden aber meist in gewissem Ausmass von Bodenbestandteilen aufgenommen (sorbiert) und damit stärker zurückgehalten als das Wasser selbst [z.B. Smettem und Trudgill, 1983].

Bei Anionen kann – vor allem in tonreichen Böden – genau das Gegenteil eintreten. Von gewissen Porenbereichen sind sie aufgrund ihrer negativen Ladung ausgeschlossen, so dass sie sich schneller bewegen als die Wasserphase [z.B. Schoen et al., 1999].

Wasserisotope haben den Nachteil, dass sie zum Teil nur beschränkt zugelassen und die analytischen Nachweisverfahren aufwändig sind.

Einen typischen Versuchsaufbau zeigt Abbildung 2: Über einen gewissen Zeitraum hinweg wird mittels einer Beregnungsapparatur eine bestimmte Niederschlagsmenge, die mit *Tracer* versetzt ist, ausgebracht. Interessieren stationäre Verhältnisse, wird die Beregnung lange vor der *Tracer*zugabe gestartet, damit sich die Wassergehalte während dem Ausbringen des *Tracers* nicht mehr ändern. Entscheidend ist dabei die Rate der Bewässerung. Sie bestimmt den mittleren Wassergehalt und das Fliessregime.

Um die Stoff- oder Wasserflüsse zu bestimmen, müssen die Versuchsflächen beprobt werden. Idealerweise müsste dazu das gesamte drainierende Wasser aufgefangen und analysiert werden. Dies ist bei Feldeböden jedoch kaum möglich, ausser

wenn Drainageleitungen existieren. Solche erfassen aber in der Regel nur einen (unbekannten) Teil der Fläche [z.B. Kladvko et al., 1999]. Lysimeter erlauben das Auffangen des gesamten Perkolates. Die Drainage am unteren Rand beeinflusst jedoch in vielen Fällen den Wasserfluss im Lysimeter, wie Vergleiche numerischer Modelle [Flury et al., 1999] und verschiedener Lysimeter [Simmonds und Nortcliff, 1998] gezeigt haben. Nicht weniger problematisch ist eine Beprobung mittels Saugkerzen oder Saugplatten. Diese können das Fliessregime ebenfalls beeinflussen. Saugkerzen haben vor allem den Nachteil, dass sie nur ein relativ kleines und nicht genau bekanntes Gebiet erfassen. Es ist deshalb schwierig, mit ihnen repräsentative Mittelwerte oder ein gutes Bild der Fliessmuster zu erhalten [Schoen et al., 1999], ausser sie werden sehr dicht gesetzt [Hagedorn et al., 1999].

Meist wird am Ende eines Experimentes eine destruktive Beprobung durchgeführt. Proben können von oben oder – nach Aufgraben eines Profils – horizontal entnommen werden. Diese Art der Beprobung ist sehr aufwändig und erlaubt deshalb keine sehr hohe räumliche Auflösung. Für die meisten anionischen *Tracer* oder Isotope ist sie jedoch unumgänglich. Bei geringer Probendichte ergeben sich gleiche Probleme wie bei den Saugkerzen [Fleming und Butters, 1995]. Farbstoffe [z.B. Corey, 1968; Smettem und Trudgill, 1983; Flury, 1994b, Aebly et al., 1997] bieten den grossen Vorteil, dass ihre zweidimensionale Verteilung in einem Profil mit guter räumlicher Auflösung fotografisch festgehalten werden kann. Aus den Farbverteilungen lässt sich mit bildanalytischen Methoden auf die Konzentrationsverteilung schliessen [Forrer et al., 2000].

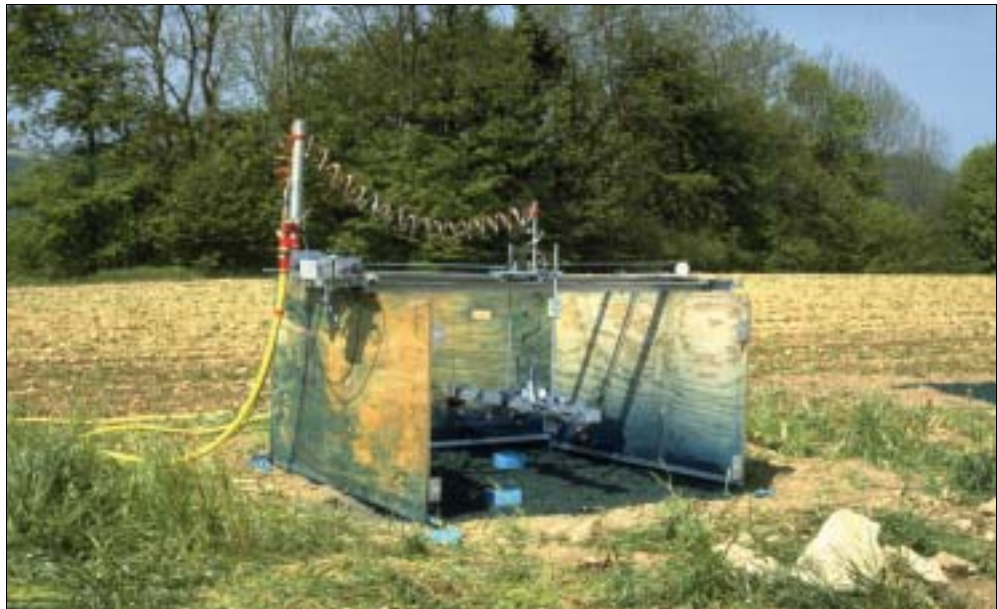


Abb. 2: Typischer Versuchsaufbau für ein Infiltrationsexperiment (Flury et al., 1994). Eine Beregnungsapparatur verteilt Niederschlag und gegebenenfalls *Tracer* gleichmässig über die Versuchsfläche.

(Bildquelle: Bodenphysik, ItÖ, ETH Zürich)

5.1.2 Langzeitbeobachtungen

Bei langfristigen Untersuchungen werden meist verschiedene PSM entsprechend ihrem üblichen Gebrauch ausgebracht. Um den Wasserfluss zu charakterisieren, werden oft zusätzlich anionische *Tracer* wie Chlorid oder Bromid eingesetzt. Die Resultate der Messung dieser *Tracer* können für die Kalibrierung oder Validierung eines Wasserhaushaltsmodelles verwendet werden. Die Beprobung kann analog den ereignisorientierten Untersuchungen erfolgen. Ein destruktives Sampling ist allerdings nur begrenzt möglich. Oft werden Lysimeter eingesetzt [z.B. Jabro et al., 1994; Bergstrom, 1996; Jene et al., 1999] oder Daten aus Drainage- oder Grundwasserproben verwendet [z.B. Granitza et al., 1999; Larsson und Jarvis, 1999; Lennartz et al., 1999]. Die Menge an PSM zu bestimmen, die beispielsweise die Wurzelzone verlassen hat oder das Grundwasser erreicht, erweist sich als sehr schwierig. Entsprechend finden sich wenige Angaben in der Literatur. Sie stammen meist aus Lysimeterversuchen oder aus Feldexperimenten, in welchen Drainagewasser aufgefangen wurde.

5.2 Resultate

5.2.1 Ereignisorientierte Untersuchungen

Die Abbildungen 3 bis 8 zeigen vertikale oder horizontale Ansichten von Böden, auf welchen Infiltrationsversuche mit einem Farbtracer durchgeführt wurden. Es handelt sich dabei teils um stationäre Versuche (d.h. bei konstanten Wassergehalten), teils um transiente (bei zeitlich variablen Wassergehalten). In Tabelle 1 finden sich die Angaben zu den experimentellen Bedingungen.

Die Variabilität der beobachteten Fließmuster ist sehr gross. Nur in Ausnahmefällen wurde eine homogene Infiltrationsfront beobachtet. In weitaus den meisten Fällen schien der Wasserfluss sehr heterogen zu erfolgen. Wie aus Abb. 3 ersichtlich ist, zeigen die Tiefenprofile des Farbdeckungsgrades selten einen einigermaßen glatten, monoton abnehmenden Verlauf. Die Tatsache, dass die höchsten Farbanteile zum Teil im untersten Bereich des Profils zu finden sind, weist darauf hin, dass beträchtliche Mengen von Wasser und *Tracer* in diese Tiefen verfrachtet wurden.

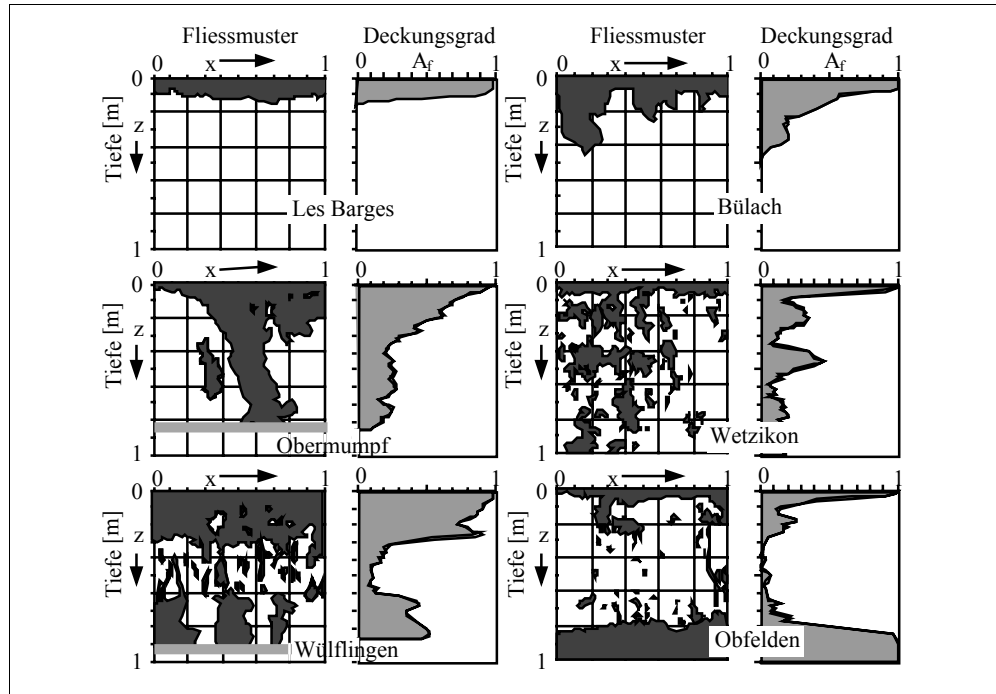


Abb. 3: In den «screening tests» von Flury et al. [1994] beobachtete Fliessmuster. Dargestellt ist jeweils links die Verteilung des Farbstoffs Brilliant Blue im untersuchten Profil, rechts die Tiefenverteilung des Deckungsgrades für sechs verschiedene Standorte.
(Bildquelle: Bodenphysik, ITÖ, ETH Zürich)

Tabelle 1: Übersicht über ereignisorientierte Experimente zur Verlagerung von Wasser und Stoffen in Feldböden.

Abb.	Quelle	Niederschlag	Bedingung	Oberfläche	Farbtracer ¹	weitere Stoffe ²	Bodentyp	Bewirtschaftung	Kommentar
3	Flury, 1994	40 mm in 8 h	transient (rel. feucht)	homogenisiert	BB		verschiedene	Kunstwiese, Acker	meist sehr unregelmässige Verteilung des Farbtracers
–	Flury 1995	30, 60 und 90 mm in 1, 2, oder 3 d	steady state	homogenisiert	BB	Br, Cl, AT, TS, TB	lehmig oder sandig	Acker	Raten beim Aufbringen jeweils 30 mm d ⁻¹
4	Von Albertini et al. (pers. Mitt.)	40 mm in 8 h	transient	natürlich	BB	–	Braunerde	Mehrjährige Kunstwiese	Risse und Wurmgänge als leitende Strukturen
5	Stamm, 1997, Stamm et al., 1998	35 mm in 7 h	steady state	natürlich	BB, AGA, SRB, SF	Br, Cl, HDO, Gülle	leicht pseudo-vergleyte Braunerde	Kunstwiese	Drainage in 100 cm Tiefe. Wurmgänge, Aggregatgrenzflächen und Wurzelkanäle als leitende Strukturen
6	Gimmi et al., 1997	41 mm in 7 h	transient	natürlich	BB	–	sandige Braunerde	Mischwald	obere Schichten z.T. sehr schlecht benetzbar
7	Gimmi et al., 1997	36 mm in 7 h	transient	natürlich	BB	–	Pseudogley	Mischwald	gebleichte Zonen als leitende Strukturen
8a-f	Forrer et al., 1999	50, 100 oder 200 mm mit Rate von 24 oder 4 mm d ⁻¹	steady state	homogenisiert	BB	Br, Cl	sandige, basenreiche Braunerde	Kunstwiese	Linienquelle. Feine Schichtgrenzen mit grossem, wasser-sättigungsabhängigem Einfluss.

¹ BB = Brilliant Blue FCF, AGA = Amino-G-Acid, SRB = Sulforhodamine B, SF = Brilliant Sulfaflavine

² AT = Atrazin, TS = Triasulfuron, TB = Terbutylazin

(Bildquelle: Bodenphysik, ITÖ, ETH Zürich)

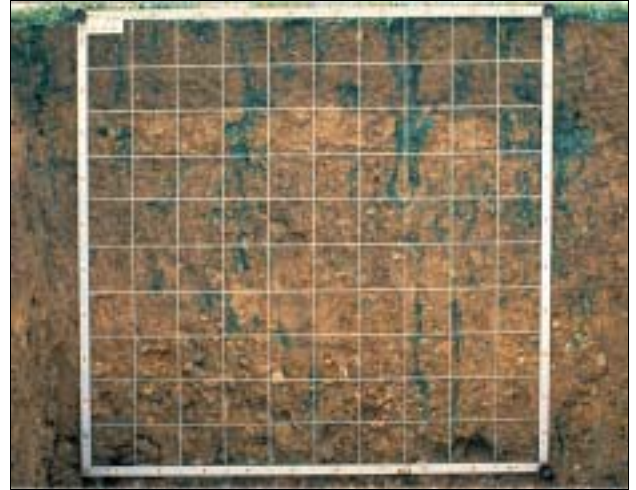
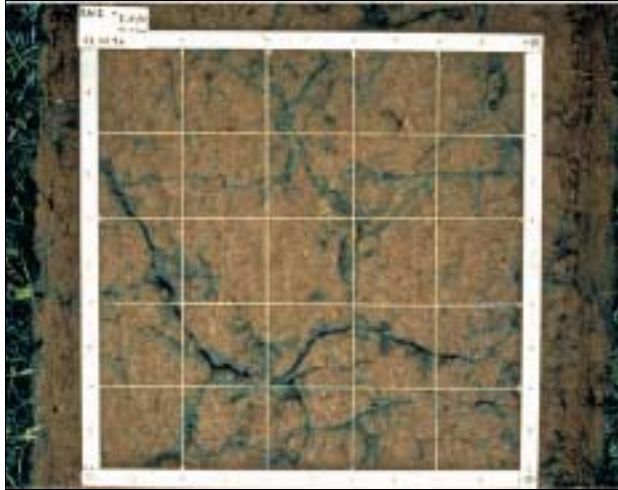


Abb. 4:

a) Profilansicht der Verteilung eines blauen Farbtacers in einer Braunerde unter Kunstwiese nach Infiltration von 40 mm Lösung in 8 h (von Albertini et al., pers. Mitteilung). Wurmgänge und Risse waren leitende Strukturen.

b) Horizontale Ansicht in 10 cm Tiefe im gleichen Experiment.

(Bildquelle: Bodenphysik, ITÖ, ETH Zürich)



Abb. 5:

Profilansicht der Farbtacerverteilung (blau) in einer leicht pseudovergleyten Braunerde unter Kunstwiese nach Infiltration von 35 mm in 7 h [Stamm 1997; Stamm et al., 1998]. Wurmgänge und Wurzeln waren stark am Wasserfluss beteiligt. (Bildquelle: Bodenphysik, ITÖ, ETH Zürich)



Abb. 6: Farbtracerverteilung in einer sandigen Braunerde über Schotter nach Infiltration von 36 mm in 7 h [Gimmi et al., 1997]. Links war der Anfangswassergehalt im Oberboden tiefer als rechts.

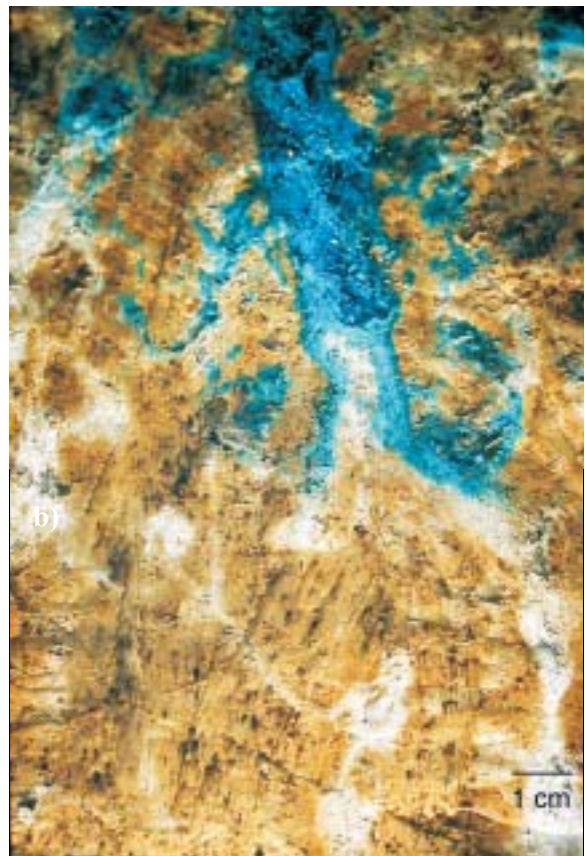
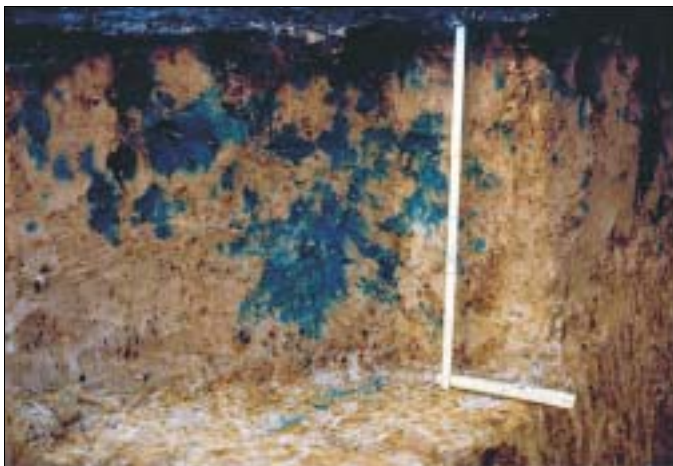


Abb. 7:
Farbtracerverteilung in einem
Pseudogley nach Infiltration
von 36 mm in 7 h [Gimmi et al., 1997].
a) Profilansicht des Oberbodens.
b) Detailansicht aus etwa 70 cm Tiefe.

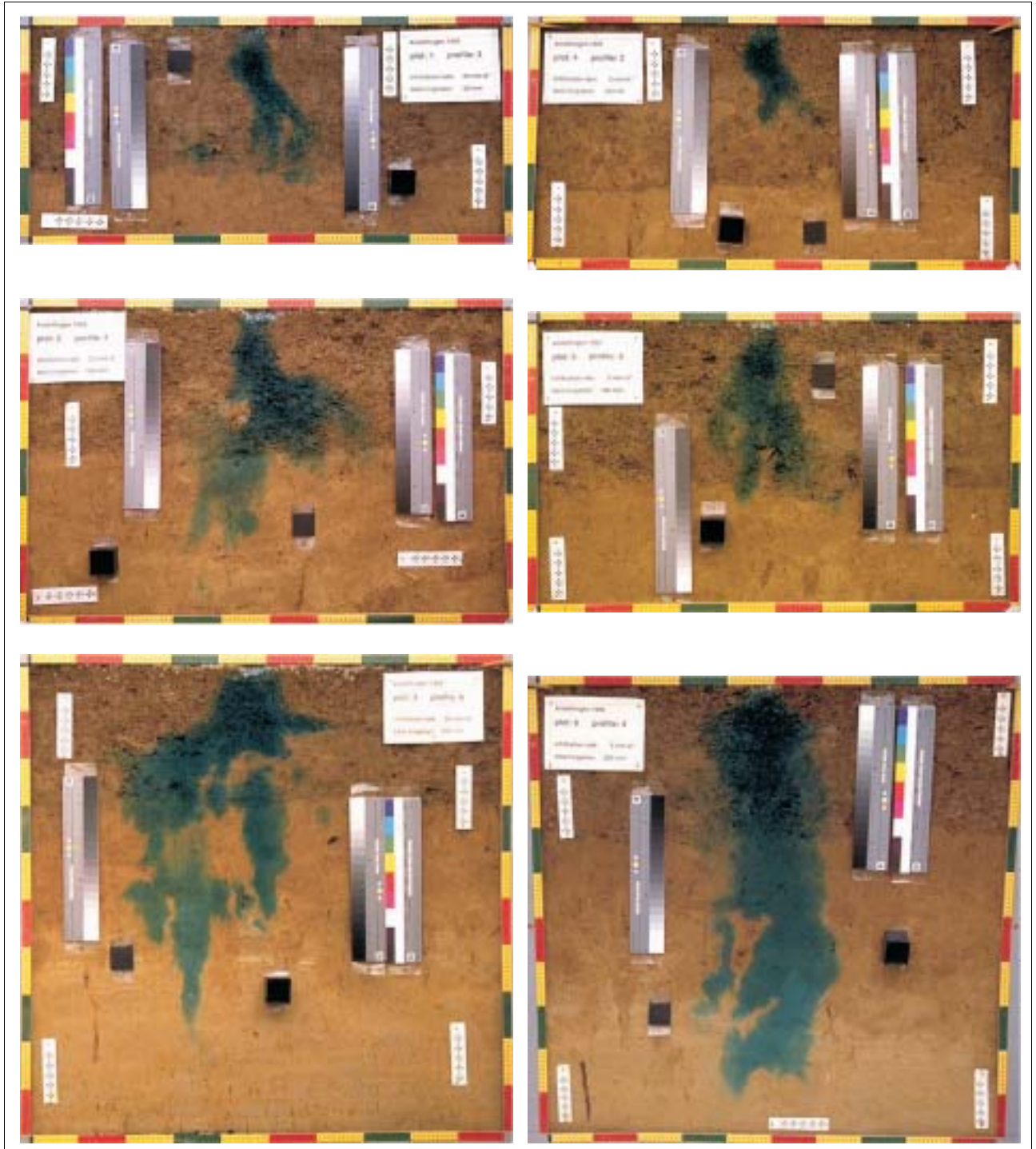


Abb. 8: Farbtracerverteilung in einer sandigen Braunerde nach Infiltration von 50 (oben), 100 (Mitte) oder 200 mm (unten) mit einer Rate von 4 (rechts) oder 24 mm d-1 (links) [Forrer et al., 1999]. Die Lösung wurde als 5 cm breite Linienquelle in der Mitte aufgegeben. (Bildquelle: Bodenphysik, ITÖ, ETH Zürich)

In einigen Experimenten wurden gleichzeitig mit den Farbstoffen und mobilen *Tracern* auch PSM eingesetzt und analysiert. Flury [1996] bietet einen sehr guten Überblick über den Transport von PSM in Feldböden, welcher die relevante Literatur bis etwa 1995 berücksichtigt. Gemäss dieser Zusammenstellung existieren nur wenige Untersuchungen, welche eine schnelle Verlagerung von PSM in Feldböden direkt nachweisen. Kladvko et al. [1991] und Traub-Eberhard et al. [1995] beobachteten, dass verschiedene Chemikalien mit unterschiedlichen Sorptionseigenschaften gleichzeitig im Drainagewasser auftauchten. Flury [1995] fand unter stationären Bedingungen sehr unterschiedliches Verhalten dreier PSM in zwei verschiedenen Böden. Im sandigen Boden erreichten sowohl anionische *Tracer* als auch die Herbizide nur relativ geringe Tiefen; für Terbutylazin konnte gar keine Verlagerung festgestellt werden. Präferenzierter Fluss wurde nicht beobachtet. Die Stoffe verhielten sich im sandigen Boden gemäss ihrer aus Sorptionsexperimenten abgeschätzten Mobilität: grösste Eindringtiefe für Chlorid, gefolgt von Triasulfuron, Atrazin und Terbutylazin. Im lehmigen Boden wurde hingegen ein sehr heterogenes Fliessmuster beobachtet. Der grösste Anteil der Herbizide verblieb zwar in der obersten Schicht. Eine beträchtliche Menge wurde aber mit 90 mm Niederschlag in drei Tagen unter die Wurzelzone verfrachtet. Für Atrazin und Triasulfuron wurden einige Prozent, für Terbutylazin weniger als 1% der ausgebrachten Menge in einer Tiefe von mehr als 0.5 m aufgefunden. Spuren aller drei Herbizide wurden bis in 90 cm Tiefe festgestellt. Schoen et al. [1999] führten eine Lysimeterstudie mit grossen (ca. 1.7 m³), ungestörten Bodenmonolithen durch. Bei Beregnungsraten von 1.05 und 1.48 mm h⁻¹ beobachteten sie, dass etwa 20% des Bodenwassers nicht am Transport teilnahm und eine beträchtliche Menge Atrazin aus dem Monolithen ausgewaschen wurde. Quantitative Angaben zur Menge der ausgewaschenen PSM sind selten. Nach Flury [1996] können bei Worst-case-Ereignissen bis zu 10% der ausgebrachten Menge in relativ grosse Tiefen verfrachtet werden.

Nicht für PSM, jedoch für gelöstes Phosphat wiesen Stamm et al. [1998] einen schnellen Durchbruch in Drainagen unter natürlichen Niederschlagsbedingungen nach. Dies ist erstaunlich, gilt doch Phosphat wegen der sehr grossen Sorptionskapazität der Böden als praktisch immobil. Offenbar kommt die potenzielle Adsorptionskapazität des Bodens beim Auftreten von präferenziellem Fluss nicht voll zum Tragen. Besonders drastisch zeigte sich dies in einem anderen Experiment mit künstlicher Beregnung [Stamm 1997]: Bereits 5 Minuten nach Ausbringen von Gülle tauchte gelöstes Phosphat in der Drainage in 1 m Tiefe auf. Bei grossen Wasserfliessgeschwindigkeiten und entsprechend kurzen Kontaktzeiten werden offenbar kinetische Effekte der Sorption wichtig, welche beispielsweise durch diffusionskontrollierten Transport zu den reaktiven Oberflächen bedingt sind.

5.2.2 Langzeitbeobachtungen

Viele Langzeitstudien sind mit dem Versuch gekoppelt, die Beobachtungen anschliessend mit einem gängigen Wasser- und Stofftransportmodell nachzuvollziehen. Auf einige dieser Arbeiten wird in einem späteren Abschnitt (6.3) speziell eingegangen.

Foussereau und Graham [1997] beobachteten die Ausbreitung eines Bromidimpulses durch einen etwa 2.5 m mächtigen nicht wassergesättigten Untergrund und im oberen Grundwasser während zwei Jahren. Sie schätzten Verweilzeiten für das Bromid im nicht wassergesättigten Untergrund von etwa 70 bis 700 Tagen. Die Verlagerung und der Eintrag ins Grundwasser fielen dabei zeitlich und räumlich sehr heterogen aus. Lennartz et al. [1999] bestimmten drei saisonale Durchbruchskurven von Bromid in Sickerwasser aus Drainagen. Das Bromid wurde jeweils im Herbst ausgebracht. Jede dieser Durchbruchskurven zeigte Merkmale von präferenziellem Fluss und konnte mit einer bimodalen Verteilung recht genau beschrieben werden.

In einem Lysimeterexperiment fand Bergstrom [1996] Konzentrationsmaxima von Chlorsulfuron in 70 cm Tiefe nach etwa 70 mm Perkolat. Diese relativ grosse Verlagerungsgeschwindigkeit scheint auf präferenziellen Fluss bzw. Ungleichgewichte zurückzuführen sein. Toiber-Yasur et al. [1999] untersuchten den Transport von Bromacil und Terbutylazin in einem brachliegenden Boden. Nach knapp einem Jahr und einer Niederschlagsmenge von 1100 mm fanden sich erhöhte Konzentrationen in einer Tiefe von 40–60 cm (Terbutylazin) bzw. 200–300 cm (Bromacil). Diese über Erwarten schnelle Verlagerung deutet darauf hin, dass die Sorptionskapazität – möglicherweise wegen schnellem Transport – nicht ausgeschöpft wurde. Heppel et al. [1999] beobachteten während 12 Monaten die Auswaschung von Isoproturon aus einem tonigen Boden in Hanglage. Risse und Wurmgänge waren dafür verantwortlich, dass sich das Herbizid sowohl vertikal als auch lateral relativ schnell bewegte. Die Konzentrationen in der Drainage in 50 cm Tiefe lagen oft über einem Wert von $20 \mu\text{g l}^{-1}$.

Auch bei Langzeitstudien liegen relativ wenige quantitative Angaben zu den Auswaschverlusten von PSM vor. Anhand experimentell gewonnener Daten sowie Modellrechnungen schätzte Bergstrom [1996], dass während elf Monaten etwa 0.3% der ausgebrachten Menge von Chlorsulfuron u.a. durch präferenziellen Fluss aus dem Lysimeter gewaschen wurde. Gemäss der Zusammenstellung von Flury [1996] liegen typische Werte in der Grössenordnung von <0.1 –1%, in Einzelfällen kann es deutlich mehr sein. Klodivko et al. [1999] bestimmten jährliche Verluste durch Drainagen von 0.04 bis 1.9% für Carbofuran, und von $\leq 0.1\%$ für Atrazin, Cyanazin und Alachlor. Die Werte waren dabei umso höher, je enger der Abstand der Drainagen war.

5.3 Diskussion

5.3.1 Vergleich mit Niederschlagsdaten

Viele der in Abschnitt 5.2.1 erwähnten Studien verwenden hohe Berechnungsintensitäten. Ein Vergleich mit Niederschlagsdaten zeigt, wie häufig derartige Ereignisse tatsächlich auftreten. Abb. 9 gibt einen Überblick über Niederschlagsdaten von zwei Stationen für die Zeiträume 1997–1999 (Winterthur) bzw. 1999 (Binningen). Die Daten stammen von der Wetterstation der Zürcher Hochschule Winterthur bzw. vom Bulletin des Lufthygieneamtes Kanton Basel-Landschaft, meteorologische Station Basel-Binningen. Sie liegen als 10 min-Mittelwerte (Winterthur) bzw. Tagesniederschläge (Binningen) vor. Abb. 9a gibt das Histogramm der Tagesniederschläge in Winterthur im Zeitraum 1997–1999 wieder. Die Verteilung ist sehr schief, mit weitaus den meisten Werten bei relativ kleinen Tagesniederschlägen (<10 mm) und einem Extremwert im Jahre 1999 von mehr als 80 mm. Werte >30 mm sind nicht sehr häufig. Aus Abb. 9b ist ersichtlich, dass es an diesen Standorten und in den erwähnten Zeiträumen pro Jahr an etwa 4–5 Tagen mehr als 30 mm d^{-1} regnete, an etwa einem Tag mehr als 40 mm d^{-1} . Die gestrichelten Kurven in Abb. 9c zeigen die kumulativen Häufigkeitsverteilungen. An 50 bis 60% der Tage viel überhaupt kein Regen. Die ausgezogenen Kurven geben die entsprechenden Verteilungen nur für die Regentage wieder. Mehr als 20 mm pro Tag fielen an etwa 5–9% aller Regentage, mehr als 30 mm an etwa 2–3% der Regentage. Aus den 10 min-Mittelwerten der Station Winterthur lassen sich Dauer und Niederschlagsmenge für einzelne Niederschlagsereignisse ableiten. Ein Ereignis wurde wie folgt definiert: Es setzt ein, sobald der 10 min-Messwert des Niederschlags grösser ist als 0.0 mm. Es endet, wenn der Wert wieder kleiner oder gleich 0.0 mm ist und der Regensensor gleichzeitig ebenfalls einen Wert von Null anzeigt. Die ausgezogene Linie in Abb. 9d entspricht einer Rate von 40 mm in 8 h, wie sie in vielen Versuchen verwendet wurde. Die gestrichelten Linien entsprechen den Raten der Versuche von Forrer et al. [1999].

Die Daten zeigen, dass in den erwähnten Feldversuchen meist hohe, aber nicht unrealistische Berechnungsraten und -mengen eingesetzt wurden. Ereignisse mit ähnlichen Raten und Mengen traten an einigen wenigen Tagen pro Jahr auf, solche mit ähnlichen Raten, aber nur halb so grossen Mengen deutlich häufiger. Die Raten von nur 4 oder 24 mm d^{-1} , wie sie in den Versuchen von Forrer et al. [1999] zur Anwendung kamen, liegen am unteren Rand bzw. in der Mitte der beobachteten Ereignisse. Es bleibt zu erwähnen, dass für aussagekräftigere Vergleiche die Niederschläge über längere Zeiträume und für mehr Stationen analysiert werden müssten, denn die Jahresniederschläge schwankten beispielsweise beträchtlich. Sie betrugen in Winterthur 638 mm (1997), 1093 mm (1998) und 1461 mm (1999) bzw. in Binningen 1445 mm (1999). Eine Möglichkeit zur Abschätzung typischer Niederschlagsintensitäten bestimmter Gebiete bietet beispielsweise der hydrologische Atlas der Schweiz [Spreafico et al., 1992].

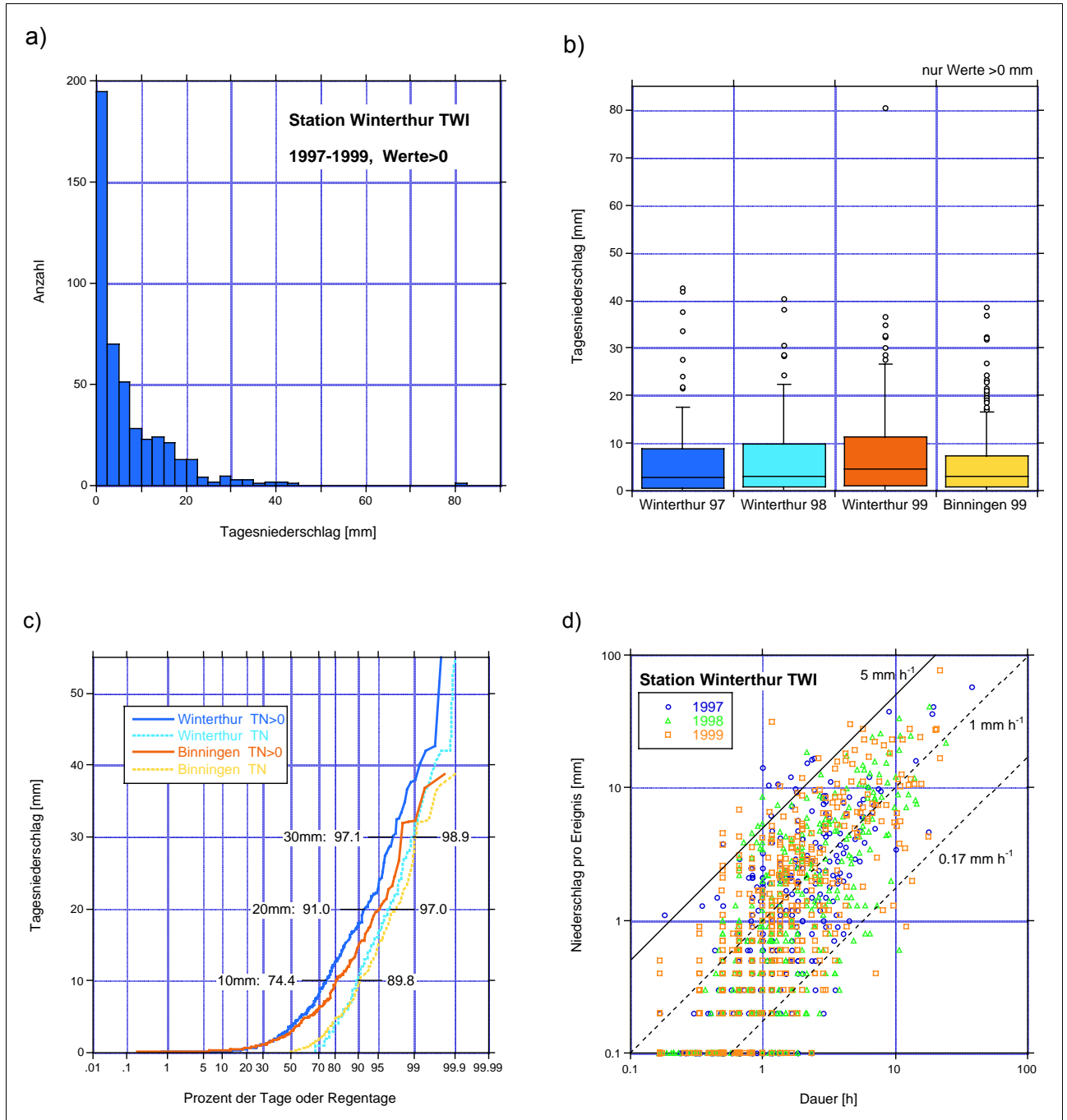


Abb. 9: Niederschlagsdaten der Stationen Winterthur TWI und Binningen der Jahre 97 bis 99.
a) Histogramm der Tagesniederschläge in Winterthur 1997–1999.
b) Box-Darstellungen für die beiden Standorte.
c) Kumulative Häufigkeitsverteilungen.
d) Niederschlagsintensitäten in Winterthur.

5.3.2 Ursachen von präferenziellem Fluss

Präferenzieller Fluss kann sehr unterschiedliche Ursachen haben. Das Phänomen tritt vor allem bei relativ hohen Niederschlagsraten auf. Oft sind Makrostrukturen wie Wurmgänge, Risse, Aggregatsgrenzflächen oder Wurzelkanäle beteiligt. Daneben führt auch schlechte Benetzbarkeit einzelner Bereiche zu heterogenem Wasserfluss, beispielsweise in trockenen, sandigen Böden oder in Horizonten mit viel organischem Material [Dekker und Ritsema, 1994]. Das Mikrorelief kann ebenfalls dazu beitragen, dass Wasser nur an relativ wenigen Stellen infiltriert und in die Tiefe geleitet wird. Unter Umständen können in der obersten Bodenschicht grosse laterale Flüsse auftreten, welche das Wasser zu den bevorzugten Fliessbereichen führen [Ritsema und Dekker, 1995; Flühler et al., 1996]. Schliesslich spielen auch Schichtgrenzen eine Rolle. Solche wirken oft stauend und können dadurch beispielsweise instabilen, fingerartigen Fluss initiieren. Ein Trichtereffekt bei geneigten Schichten (funneling) führt ebenfalls zu sehr unregelmässiger Wasserinfiltration [Kung, 1993]. Schichtgrenzen verursachen aber auch eine starke laterale Durchmischung und bringen damit bevorzugte Fliessbahnen lokal zum Verschwinden [Flühler et al., 1996].

5.3.3 Schätzung von Verlagerungszeiten

Verweilzeiten oder Verlagerungsgeschwindigkeiten zu bestimmen, stellt eine der Hauptaufgaben dar, wenn es gilt, das Gefährdungspotenzial von PSM abzuschätzen. Die Verteilung von Verweilzeiten für eine Beobachtungstiefe z , welche wir mit $f^f(t, z)$ bezeichnen, ist gekoppelt mit dem Stofffluss $j_s(t, z)$ in der gleichen Tiefe. Wird am oberen Rand des Bodens ein sehr kurzer Stoffpuls mit der Masse pro Fläche m aufgegeben, gilt [Jury und Roth, 1990]

$$f^f(t, z) = \frac{j_s(t, z)}{m}.$$

Falls am oberen Rand Wasser mit einer Rate j_w und einer Konzentration C_0 kontinuierlich aufgegeben wird, lautet die Beziehung

$$f^f(t, z) = \frac{1}{j_w C_0} \frac{\partial j_s(t, z)}{\partial t}.$$

Liegen neben den Inputdaten m oder $j_w C_0$ Ausflussdaten $j_s(t, z)$ aus Drainagen oder – falls repräsentativ – Lysimetern oder Saugplatten vor, können Stoffflüsse und somit Verweilzeiten direkt ermittelt werden. Es wäre wünschbar, experimentell bestimmte Tiefenverteilungen von Farb- oder anderen Tracerkonzentrationen ebenfalls für eine Abschätzung der Verweilzeiten heranziehen zu können. In den meisten Fällen ist dies jedoch nicht möglich. Mittels Bildanalyse oder durch destruktive Beprobung lassen sich nämlich Stoffkonzentrationen, nicht jedoch Stoffflüsse bestimmen. Eine Massenbilanzgleichung stellt die allgemeine Beziehung zwischen

Stoffkonzentrationen C und Stoffflüssen j_s her. Für konservative *Tracer* lautet die Bilanzgleichung im eindimensionalen Fall

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial j_s}{\partial z} = 0.$$

Daraus ergibt sich für den Stofffluss j_s

$$j_s(z, t) = j_s(0, t) - \int_0^z \frac{\partial C(z', t)}{\partial t} dz'.$$

Dies bedeutet: Für eine Abschätzung des zeitabhängigen Stoffflusses $j_s(t; z)$ in der Tiefe z aus Konzentrationen im Bereich 0 bis z müssen diese nicht nur zum Zeitpunkt t der Probenahme, sondern für das ganze Zeitintervall von 0 bis t bekannt sein, damit die entsprechenden Ableitungen gebildet werden können. Bei Feldversuchen wird dies kaum möglich sein. Entsprechend lassen sich durch Messung der Stoffkonzentrationen allein keine Verteilungen der Verweilzeiten abschätzen. Werden gleichzeitig mit den Konzentrationen Wasserflüsse j_w ermittelt, lassen sich die Stoffflüsse als $j_s \approx j_w C$ näherungsweise berechnen. Die Näherung ist allerdings schlecht, wenn der (unbekannte!) dispersive Anteil des Flusses gross ist. Um Stoffflüsse und Verweilzeiten aus Konzentrationsdaten abzuschätzen, sind deshalb in der Regel Transportmodelle erforderlich.

5.3.4 Anforderungen an ein Transportmodell

Aus den Ergebnissen der Feldstudien wird klar: Ein Modell, welches für die Beschreibung des Transportes von PSM auf dieser Skala eingesetzt werden soll, muss bestimmte Prozesse beschreiben können. Wie sich zeigte, perkoliert Wasser in der Regel sehr heterogen durch den Boden. Dies beeinflusst die Verteilung der Verlagerungszeiten. Ein Transportmodell sollte deshalb solch heterogenen Wasserfluss nachvollziehen können oder zumindest die sich daraus ergebenden Effekte. Starkniederschlagsereignisse sind zwar selten, doch für die Tiefenverlagerung von Stoffen sehr bedeutsam. Eine einfache Mittelung der Transportparameter für ein konzeptuelles Modell liefert keine konservativen Resultate. Es wurde klar, dass bei kurzen Verweilzeiten die Sorptionskapazität des Bodens nicht voll ausgeschöpft wird, und somit die Rückhaltewirkung (Retardation) des Bodens nicht zum Tragen kommt. Auch diesen Effekt sollte das Transportmodell beispielsweise mit Hilfe eines kinetischen Ansatzes abbilden können.

5.4 Zusammenfassung

Die Feldbeobachtungen geben Antworten auf einige der in Kapitel 2 gestellten Fragen. Die Resultate lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Wasserfluss in Feldböden ist im allgemeinen sehr heterogen.
- Präferenzieller Fluss tritt sehr oft auf, vor allem bei hohen Niederschlagsraten, in lehmigen Böden, oder bei sehr trockenen Verhältnissen in sandigen Böden.
- Eine Quantifizierung typischer Verlagerungsgeschwindigkeiten oder -zeiten in Feldböden ist sehr schwierig. Messungen der Tiefenprofile von Stoffkonzentrationen lassen dies kaum zu; Messungen der ungestörten Stoffflüsse sind praktisch nicht erhältlich.
- Präferenzieller Fluss ist auch für PSM ein relevanter Prozess: Selbst prinzipiell stark sorbierende Verbindungen wie Phosphat werden offenbar teilweise aus dem nicht wassergesättigten Untergrund ausgewaschen.
- Während eines einzelnen Niederschlagsereignisses kann eine beträchtliche Menge eines zuvor ausgebrachten *Tracers* oder PSM in tiefere Schichten oder ins Grundwasser gelangen. Bei PSM wurde beobachtet, dass in Extremfällen bis zu 10% der ausgebrachten Menge ausgewaschen werden [Flury, 1996].
- Über eine ganze Vegetationsperiode sind die ausgewaschenen Mengen vermutlich eher gering ($<0.1\text{--}1\%$, Flury 1996). Falls der Abbau im Grundwasser gehemmt ist, können aber selbst derart geringe Mengen über lange Zeiträume zum Problem werden.

6 Übersicht über bestehende Stofftransportmodelle

6.1 Modellkonzepte

6.1.1 Bewegung des Wassers

Wasserfluss in Böden und im nicht wassergesättigten Untergrund ist ein stark nichtlinearer Prozess. Je nach Systemzustand variiert beispielsweise die Menge des Sickerwassers, welche ins Grundwasser drainiert, bei gleichem Niederschlag beträchtlich. Zudem ist der natürliche Untergrund in der Regel sehr heterogen. Neben Unterschieden der Durchlässigkeiten (d.h. der Fließwiderstände) in vertikaler Richtung treten auch beträchtliche Unterschiede in horizontaler Richtung auf. Der Wasserfluss im Untergrund ist von Potenzialgradienten angetrieben: Wasser fließt im allgemeinen von oben nach unten (Gravitation), von feuchten Bereichen zu trockenen (Saugspannung) oder von Bereichen mit hohem Wasserdruck zu solchen mit niedrigerem. Die kombinierten Effekte von lokalen Potenzialgradienten und Wasserdurchlässigkeiten führen in der Regel zu einem stark heterogenen Fließmuster.

Richardsgleichung

Makroskopisch (d.h. auf einer Stufe über der Porenskala) kann der Wasserfluss im nicht wassergesättigten Untergrund mit dem Buckingham-Darcy-Gesetz beschrieben werden. Dieses besagt, dass die Wasserflussdichte proportional ist zum hydraulischen Gradienten. Der Proportionalitätsfaktor entspricht der hydraulischen Leitfähigkeit, welche eine Funktion ist von Wassergehalt oder Wasserpotenzial sowie der Struktur des porösen Mediums. Aus der Kontinuitätsgleichung für Wasser und der Buckingham-Darcy-Gleichung ergibt sich die sogenannte Richardsgleichung. Diese bilanziert die lokale Änderung des Wassergehaltes aus der Summe der Zu- und Wegflüsse sowie den Effekten von Quellen und Senken. Um die Richardsgleichung zu lösen, muss – neben der Wasserleitfähigkeit – eine weitere Materialeigenschaft des porösen Mediums bekannt sein: die sogenannte Wasserspannungskurve oder Bodenwassercharakteristik. Sie beschreibt den Zusammenhang zwischen Wassergehalt und Wasserpotenzial. Die beiden Materialfunktionen, die hydraulische Leitfähigkeit und die Wasserspannungskurve, sind in der Regel ortsabhängig.

Die Richardsgleichung beruht auf dem Kontinuumsansatz, das heisst, sie beschreibt nicht den Wasserfluss in einzelnen Poren, sondern lediglich den gemittelten Fluss durch ein poröses Medium. Um die Parameterfunktionen zu bestimmen, ist deshalb ein bestimmtes minimales Probenvolumen erforderlich, welches für ein Bodenelement repräsentativ sein sollte. Sehr kleinräumige, unter Umständen wesentliche Strukturen wie einzelne Risse sind aber so nur schwer separat zu erfassen. Zur Lösung der Richardsgleichung wird vorausgesetzt, dass die Gasphase kontinuierlich und sehr mobil ist, sodass der Druck in der Gasphase überall dem atmosphärischen entspricht. Effekte gefangener Luft, wie sie vor allem nahe der Wassersättigung auftreten können, werden auf diese Weise nicht berücksichtigt.

Kaskadenmodell (tipping buckets)

Da die Lösung der Richardsgleichung im Allgemeinen numerisch anspruchsvoll und die Bestimmung der Parameterfunktionen experimentell aufwändig ist, existieren vereinfachte Konzepte, um den Wasserfluss im nicht wassergesättigten Untergrund zu beschreiben. Im Kaskaden- oder Plattenmodell wird der Untergrund hydraulisch als eine Kaskade von Kompartimenten aufgefasst, die jeweils eine bestimmte Wasseraufnahmekapazität haben. Ist die Kapazität eines Kompartimentes noch nicht erreicht, wird von oben zufließendes Wasser gespeichert; andernfalls wird es nach unten weitergeleitet. Die wesentlichen Parameter in diesem Modell sind die Speicherkapazitäten sowie die Ausdehnung und die Zahl der einzelnen Kompartimente.

Real auftretende Fliessprozesse können mit derartigen Modellen nur beschränkt abgebildet werden. Kapillarer Aufstieg beispielsweise kann nicht beschrieben werden, ebensowenig wie laterale Flüsse oder die vollständige Sättigung einzelner Schichten. Gerade wegen ihrer Einfachheit werden aber diese Modelle trotzdem eingesetzt, insbesondere um den Wassertransport auf relativ grossen Skalen zu beschreiben. Eine Herleitung der Modellparameter aus unabhängigen Messungen oder Beobachtungen ist generell nicht einfach, auch wenn die Speicherkapazität meistens zur sogenannten Feldkapazität, dem Wassergehalt nach Drainage des Gravitationswassers, in Beziehung gebracht wird.

Umgang mit räumlicher Heterogenität

Quasi eindimensionaler Wassertransport in einer Laborsäule kann oft relativ gut mit einem der erwähnten Ansätze beschrieben werden. Wasserfluss auf der Feldskala ist aber fast immer geprägt von mehr oder weniger starken Heterogenitäten. Grundsätzlich wird auf verschiedene Arten versucht, diesem Aspekt Rechnung zu tragen:

- **Richardsgleichung mit heterogenem Parameterfeld:**

Die Materialfunktionen sind lokal variabel. Oft ist die genaue räumliche Anordnung der Eigenschaften nicht bekannt. Stattdessen werden aufgrund von geschätzten Mittelwerten, Varianzen und Korrelationslängen der benötigten Parameter «typische» Anordnungen generiert. Alternativ wird versucht, aufgrund bestimmter Hilfsvariablen die Strukturen der Materialeigenschaften deterministisch abzubilden.

- **Parallele Kopplung mehrerer Fliessdomänen:**

Jede Fliessdomäne ist charakterisiert durch ein Prozessmodell und ein Set von Materialfunktionen. Zwischen den verschiedenen Fliessdomänen kann ein lateraler Wasserfluss stattfinden, der mit semi-empirischen Ansätzen modelliert wird. Die Parameter, die diesen Austausch beschreiben, geben implizit die geometrische Anordnung wieder. Einen Spezialfall stellt das Zwei-Regionenmodell dar. Bei diesem fliesst Wasser nur in einer Domäne, sodass Stoffe lediglich diffusiv in die andere Domäne gelangen können.

Umgang mit zeitlicher Variabilität

Ein grosser Teil der zeitlichen Variabilität des Systemverhaltens kann – je nach Modell – durch zeitabhängige Randbedingungen (z.B. Niederschlag, Evaporation, Lage des Grundwasserspiegels) erfasst werden. Daneben werden zustandsabhängige Parameterfunktionen verwendet, beispielsweise für die Wurzelwasseraufnahme oder – eher selten – für Porositäten bei quellfähigen Medien.

6.1.2 Wechselwirkungen mit festen Bodenbestandteilen

Sorbiert ein Stoff an festen Bodenbestandteilen, wird seine Verlagerung verlangsamt. Die Sorption wird meist aufgrund von Sorptionsisothermen beschrieben. Diese geben die Gleichgewichtsverteilung zwischen der sorbierten Menge und der Konzentration in der Bodenlösung an. Für den Transport relevant ist die Ableitung dieser Isotherme nach der Konzentration. Sättigungseffekte führen zu nicht linearen Isothermen. Solche können beispielsweise mit einem Freundlich- oder einem Langmuir-Ansatz beschrieben werden.

Nicht in allen Fällen scheint die Annahme gerechtfertigt, dass bei Sorptionsreaktionen ein Gleichgewicht eintritt. Ein Ungleichgewicht wird meist mit Hilfe einer Kinetik 1. Ordnung beschrieben. Oft kann die Kinetik nicht auf die Aktivierungsenergie einer chemischen Reaktion zurückgeführt werden. Es erscheint in einem solchen Fall wahrscheinlicher, dass die Zeitabhängigkeit der Reaktion auf diffusive Prozesse zurückzuführen ist, die durch die Bodenstruktur zu Stande kommen. Dies kann approximativ auch mit einem kinetischen Ansatz 1. Ordnung modelliert werden. Die kinetischen Raten hängen dann aber von der relevanten Bodenstruktur ab, und eine unabhängige Bestimmung wird schwierig sein.

Sorptionsparameter werden oft in Batch-Versuchen bestimmt. Dort ist die exponierte Oberfläche in der Regel grösser als bei natürlich gelagerten Böden, was zu tendenziell eher grösseren Sorptionskapazitäten führt. Feldböden sind nicht nur in Bezug auf die hydraulischen, sondern auch auf die chemischen Eigenschaften heterogen [Chen und Wagenet, 1997; Macintyre et al., 1998; Piccolo et al., 1998; Oliveira et al., 1999]. Für Risikoabschätzungen sollten deshalb Retardationskoeffizienten oder Sorptionsraten ebenfalls als Eingangsgrössen mit einer beträchtlichen Variabilität behandelt werden.

6.1.3 Wechselwirkungen mit Organismen

Der Abbau der PSM erfolgt hauptsächlich durch Bodenorganismen, auch wenn chemisch katalysierte Umwandlungen ebenfalls möglich sind. Im Labor bestimmte Abbaukurven werden meist mit einem Ansatz 1. Ordnung beschrieben. Die Abnahme der Konzentration in einem Batch-Versuch erfolgt demnach exponentiell.

Die Übertragung von im Labor bestimmten Abbauraten auf Feldversuche ist sehr schwierig, da der Abbau von zahlreichen Faktoren wie Temperatur, Feuchtigkeit oder Substratangebot abhängt, welche fürs Feld kaum bekannt und oft nicht konstant sind. Es scheint auch, dass für sorbierte Verbindungen andere Raten gelten als für gelöste [Guo et al., 2000]. Um der Koppelung des Abbaus mit anderen Prozessen Rechnung zu tragen, werden deshalb häufig weitere Prozesse (z.B. Bodentemperatur) im Modell mit berücksichtigt.

6.2 Aktuelle Stofftransportmodelle

Tabelle 2 listet einige bekannte Transportmodelle auf, welche verwendet werden, um den Transport von PSM zu beschreiben. Nebst diesen existiert eine Reihe weiterer, welche zum Teil aber wesentlich weniger flexibel sind. Im Bereich der Screening-Modelle ist dasjenige von Beltman et al. [1995] interessant. Mit ihm wurde ziemlich genau die aktuelle Fragestellung angegangen. Es kann allerdings nur stationären Fluss mit linearer Gleichgewichtssorption beschreiben. In Abbaspour und Schulin [1996] findet sich eine detaillierte Übersicht über zahlreiche, nicht spezifisch auf PSM ausgerichtete Stofftransportmodelle.

Präferenziellen Fluss kann auf die eine oder andere Weise nur etwa die Hälfte der aufgelisteten Modelle (HYDRUS-2D, LEACHM, MACRO, SOIL) simulieren. Die Modelle, welche den Wasserfluss nur über ein Kaskadenmodell beschreiben, sind in der Regel weniger flexibel bezüglich der unteren Randbedingung (vgl. Kapitel 6.1.1). Bei der Sorption wird fast ausschliesslich Gleichgewicht angenommen, mit Ausnahme von HYDRUS-1D, HYDRUS-2D und LEACHM. Die Werte der Abbauparameter sind meist mit der Bodentemperatur gekoppelt, teilweise auch mit dem Wassergehalt.

6.3 Vergleiche zwischen Simulationen und Experimenten

Verschiedene Langzeitstudien vergleichen die beobachtete Verlagerung von PSM oder *Tracern* mit Modellrechnungen (vgl. Kapitel 5.2.2).

6.3.1 Transport nicht reaktiver Stoffe

Den Durchbruch mobiler *Tracer* in Lysimetern konnten Saxena et al. [1994] mit MACRO nur modellieren, wenn bei lehmigem Boden zwei Fliessbereiche verwendet wurden. In sandigem Boden fanden die gleichen Autoren keinen sehr grossen Unterschied der Simulation mit oder ohne zweiten Fliessbereich. Die Auswaschung mit präferenziellem Fluss war jedoch um etwa 25% erhöht. Jabro et al. [1994] sammelten in einem schluffig-lehmigen Boden während drei Jahren Sickerwasser in 1.2 m Tiefe. Jeweils im Mai wurde Bromid ausgetragen. Die gewonnenen Daten liessen sich mit MACRO oder SLIM teilweise gut nachvollziehen. Bei beiden Modellen traten jedoch längere Perioden auf mit deutlichen Abweichungen zwischen Messungen und Modellierung. Larsson et al. [1999] untersuchten den Transport konservativer *Tracer* zu Drainagen in einem schlecht benetzbaren, sandigen Boden, in welchem fingerartiger Fluss auftrat. Simulationen der gemessenen Abflusskonzentration mit MACRO mit oder ohne Berücksichtigung einer immobil Zone gaben sehr ähnliche Resultate, vermutlich weil der Untergrund meist sehr nass war. Rechnungen für ein Szenario, bei dem im Herbst ein Pestizid mit kurzer Halbwertszeit appliziert wird, zeigten aber, dass in diesem Fall die Tiefenverlagerung durch präferenziellen Fluss um etwa 80% erhöht würde von 1.2% zu 2.2% der ausgebrachten Menge.

Tabelle 2: Übersicht über einige Modelle zur Beschreibung der Verlagerung von Pflanzenschutzmitteln in Böden.

Name	Prozess												Parameter-fitting	Hetero-genität	Vorteile	Nachteile	Bemerkungen
	Wassertransport ¹	Schneller Fluss	Wurzelwasseraufnahme	Evapotranspiration	Pflanzenwachstum	Drainage	Oberflächenabfluss	Interzeption	Sorption	Abbau	Verflüchtigung	Temperatur					
HYDRUS-1D	RG	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	Schichten	Hysterese der hydraulischen Parameter gutes Interface	kein schneller Fluss	
HYDRUS-2D	RG	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*		2-dim.-Parameter	wie HYDRUS-1D, zudem heterogenes Fließfeld, je nach Systemzustand	Braucht viele Inputparameter	Scaling von hydraulischen Parametern möglich
LEACHM	RG oder KM	* für KM	*	?	?	?	?	?	*	*	?	?		Schichten 2 Fließbereiche für KM	verschiedene Wasserflussmodelle mobil/imobil-Konzept für KM kinetische Sorption	kein schneller Fluss bei RG	Verschiedene Varianten, z.B. LEACHP für Pestizide Braucht Tagesintervalle GIS-Version
MACRO	RG/KM	*	*	*	*	*	?	*	*	*	*	*		Schichten 2 Fließbereiche	Option für schnellen Fluss gutes Interface Parameterschätzungen via Datenbanken (MACRO-DB)	unabhängige Bestimmung der Grenze der zwei Fließbereiche schwierig	Schneller Fließbereich: KM MACRO-DB gutes Managementwerkzeug
PELMO	KM		*?	*	*	?	*	?	*	*	*	*		Schichten	einfach gutes Interface	KM für Wassertransport kein schneller Fluss	Weiterentwicklung von PRZM kann Erosion modellieren
PESTLA	RG		*	*	*	?	?	?	*	*	*	*		Schichten		kein schneller Fluss?	Submodell für Wasserfluss SWACROP Linearisierung der hydraulischen Parameter
SLIM	KM?	*	?	?	?	?	?	?	*?	*?	?	?		Schichten	Angabe von Verteilungen von Inputparametern möglich	KM für Wassertransport? kein schneller Fluss	
SOIL			*	*	?	?	?	*	*?	*?	*	*		Schichten 2 Fließbereiche	Schneeschnmelze, Gefrieren	kein schneller Fluss nicht spezifisch für Pestizide	verschiedene Module für Stofftransport (zB SOILN)
VARLEACH			?	*	?	?	?	?	*?	*	*	*?		Schichten	einfach	KM für Wassertransport kein schneller Fluss	

¹ RG = Richardsgleichung, KM = Kaskadenmodell

6.3.2 Transport von Pflanzenschutzmitteln

Mueller [1994] versuchte, PRZM durch Parameteroptimierung an Lysimeterdaten für Dichlorprop und Bentazon anzupassen. Dies gelang zufriedenstellend für Bentazon, nicht jedoch für Dichlorprop. Walker et al. [1996] konnten den Transport von Alachlor, welches wenig mobil ist, in sehr kleinen Lysimetern (11x30 cm) im Feld mit VARLEACH, LEACHP oder PRZM2 in etwa beschreiben, den Transport des mobileren Metribuzin hingegen nicht. Die relativ schnelle Verlagerung von Chlorsulfuron in einem Lysimeterexperiment [Bergstrom 1996] konnte mit MACRO nur nachvollzogen werden, wenn zwei Fließbereiche definiert wurden. Mit lediglich einem Fließbereich wurde die Auswaschung deutlich unterschätzt. Um allerdings die Konzentrationen zufriedenstellend zu simulieren, musste eine im Vergleich zum Laborwert fünffach höhere Abbaurrate verwendet werden.

Peters [1997] untersuchte die Verlagerung verschiedener PSM ins Grundwasser an zwei Standorten. Für einen Standort ergaben Simulationen mit PELMO, VARLEACH oder LEACHM sowie Messungen übereinstimmend praktisch keinen Austrag ins Grundwasser. Für den anderen Standort hingegen prognostizierten die Modelle den vollständigen Abbau im Boden, währenddessen die Messungen einen deutlichen Eintrag ins Grundwasser belegten. Smetnik und Frost [1999] verglichen

die Verlagerung von Tridimenol in Lysimetern mit PELMO-Simulationen. Sie fanden essenzielle Unterschiede zwischen Messungen und Modellresultaten.

Larsson und Jarvis [1999] kalibrierten MACRO mit Hilfe von gemessenen Wassergehalten, Drainagefluss und Bromidkonzentrationen. Um zufriedenstellende Beschreibungen der beobachteten Werte zu erhalten, musste ein beträchtlicher Zufluss von Oberflächenwasser berücksichtigt werden. Simulationen von Bentazontransport ohne weitere Kalibrierungen waren insgesamt einigermaßen zutreffend, wichen aber kurzzeitig teilweise beträchtlich von den Messwerten ab. Die Berücksichtigung von präferenziellem Fluss im Modell führte in diesem Fall nicht zu einer erhöhten, sondern zu einer geringeren Auswaschung. Daraus ist ersichtlich, wie stark die beobachteten Effekte vom Zeitpunkt des Stoffein- und austrags und von der zeitlichen Entwicklung des Niederschlags abhängen. Granitza et al. [1999] schätzten die hydraulischen Parameter eines lehmigen Bodens über die in MACRO-DB verfügbaren Pedotransferfunktionen. Die Modellierung gab die Drainageflüsse und Bromidkonzentrationen während 2.5 Jahre sehr gut wieder. Die Verlagerung von Isoproturon hingegen wurde, basierend auf den geringsten im Labor bestimmten Sorptionskoeffizienten und Abbauraten, insgesamt um den Faktor 2 überschätzt. Jene et al. [1999] verglichen Simulationen von Lysimeter- und Saugplattenexperimenten mit Bromid und Benazolin in einem sandigen Boden. Sie konnten den Wasserfluss mit unabhängig geschätzten Parametern mit PELMO und MACRO zufriedenstellend simulieren, überschätzten jedoch den Austrag von Benazolin und seiner Derivate. Sie fanden keine signifikanten Unterschiede in den Resultaten von PELMO und MACRO. Thorsen et al. [1998] verglichen vier Transportmodelle (PELMO, PESTLA, MACRO, MIKE SHE) anhand von Labor- und Feldlysimeterdaten. Die Daten zeigten einen deutlichen Einfluss von präferenziellem Fluss. Entsprechend besser schnitten im Vergleich die Modelle MACRO und MIKE SHE ab, die dies beschreiben können. Bei der Simulation verschiedener Experimente mit PELMO fanden Klein et al. [2000], dass das Modell die beobachteten Spurenkonzentrationen von Pestiziden im Perkolat sowie – naturgemäss – die Effekte eines fluktuierenden Wasserspiegels nicht wiedergeben konnte. Das grösste Problem stellte aber die Bestimmung der Abbauraten dar, welche ganz offensichtlich nicht aus Labordaten abgeleitet werden konnten.

6.3.3 Unsicherheiten der Modellierung

Sowohl Inputparameter wie auch Modellkonzepte und demzufolge auch die Simulationsresultate sind mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Diese Unsicherheiten zu quantifizieren ist jedoch sehr schwierig. Nur in wenigen Fällen [z.B. Jarvis et al, 2000] wird versucht, Unsicherheiten der Modellrechnungen anzugeben, obwohl dies sowohl für die Validierung als auch für die Evaluation eines Modells entscheidend wäre.

Unsicherheiten aufgrund der Variabilität der Inputparameter können mit stochastischen Simulationen ermittelt werden. Es ist beispielsweise möglich, die Parameter für deterministische Modelle gemäss bekannten oder geschätzten Häufigkeits-

verteilungen auszuwählen [z.B. Wu und Workman, 1999; Zacharias et al, 1999; Loll und Moldrup, 2000]. Unsicherheiten aufgrund der Modellkonzepte können mit Modellvergleichen untersucht werden.

Ein interessantes «Experiment» führten in diesem Zusammenhang Brown et al. [1996] durch. Sie untersuchten die Variabilität von Simulationsresultaten für ein gegebenes Experiment, indem sie alle verfügbaren Informationen zum Experiment identisch an fünf verschiedene Modellierergruppen sandten. Sie beauftragten diese, die Daten mit den drei Modellen LEACHP, PRZM2 und VARLEACH nachzuvollziehen. Die Ergebnisse zeigten die beste Übereinstimmung mit den Messungen in der Regel für LEACHP, die schlechtesten für VARLEACH. Für jedes Modell gab es jedoch deutliche Unterschiede zwischen den Prognosen der verschiedenen Gruppen, was die Autoren der Studie als subjektive Komponente der Modellierung bezeichneten. Die Unsicherheiten aufgrund der subjektiven Komponente waren etwa gleich gross wie die der experimentellen Daten, aber tendenziell kleiner als die Unterschiede zwischen Simulationen und Daten. Die Gründe für diese Subjektivität liegen darin, dass für kein Modell alle Inputparameter aus den verfügbaren Daten eindeutig abgeleitet werden konnten. Probleme verursachten hauptsächlich die Dispersivität, der Anfangszustand und Faktoren, die den Abbau der PSM beeinflussten. Zu ähnlichen Resultaten kamen auch Boesten und Gottesburen [2000], welche PESTLA-Simulationen zweier Modellierer mit Resultaten einer Feldstudie verglichen. Jarvis et al. [2000] versuchten, Fehlerquellen bei der Simulation mit MACRO zu analysieren. In ihrem Fall waren Abweichungen zwischen verschiedenen Modellierergruppen nicht sehr gross, sicherlich kleiner als die zwischen Messungen für Bentazon und Simulationen. Vanclooster et al. [2000] geben einen Überblick über die letzten zwei Untersuchungen sowie über weitere derartige Vergleiche.

6.4 Zusammenfassung

6.4.1 Modellkonzepte

- Es existieren heute mehrere, unterschiedlich komplexe Modellkonzepte zur Beschreibung der Stoffverlagerung in Böden.
- Einige Modelle können präferenziellen Fluss nachbilden; eine unabhängige Bestimmung der Parameter ist aber praktisch ausgeschlossen.

6.4.2 Modellierung des Transports nicht reaktiver Stoffe

- Eine Modellierung des hydraulischen Verhaltens ohne Berücksichtigung von präferenziellem Fluss führt meist zu falschen Resultaten. Die Auswirkungen von präferenziellem Fluss variieren aber stark je nach Bodentyp, Wassersättigungszustand oder Beobachtungsperiode.

- In der neueren Literatur wird oft erwähnt, dass der Wassertransport bzw. beobachtete Bromidkonzentrationen auch beim Auftreten von präferenziellem Fluss «einigermassen gut» beschrieben werden können, vorausgesetzt, es wird ein dafür geeignetes Modell verwendet. Dazu gilt es drei Dinge anzumerken:
 1. «Einigermassen gut» ist eine recht subjektive Beurteilung und deshalb eine unscharfe Qualifikation. In den meisten Studien gibt es einige Ereignisse oder Zeiträume mit schlechter Übereinstimmung zwischen Messungen und Simulationen.
 2. Meist ist eine aufwändige lokale Kalibration der Modelle nötig, z.B. mit Bromidexperimenten. Beim Auftreten von präferenziellem Fluss ist eine unabhängige Bestimmung der hydraulischen Parameter selten erfolgreich.
 3. Die meisten der erwähnten Experimente wurden in Lysimetern durchgeführt, welche nicht notwendigerweise die gleichen hydraulischen Eigenschaften aufweisen wie ein freies Feld. Der untere Rand von Lysimetern ist eine künstliche Schichtgrenze, die beispielsweise temporär stauend wirken und so eine Homogenisierung des Flusses verursachen kann. Das Auffangen von typischen Perkolaten ist leider generell ein Problem. Sind Lysimeter zudem klein oder nur in geringer Anzahl vorhanden, muss bezweifelt werden, ob sie für Feldböden repräsentativ sind.

6.4.3 Modellierung des Transports von Pflanzenschutzmitteln

- Der Transport von PSM kann noch keineswegs befriedigend nachvollzogen, geschweige denn prognostiziert werden. Um eine annähernd korrekte Simulation zu erreichen, mussten im Labor ermittelte Abbauraten in vielen Fällen erhöht werden.
- Bei einigen Experimenten war selbst durch Anpassung aller Parameter keine befriedigende Beschreibung der Messwerte möglich. Dies zeigt, dass das Prozessverständnis, wie es bisher in Modellen zur Anwendung kam, noch ungenügend ist.

6.4.4 Unsicherheiten der Modellierung

- Sowohl die Modellkonzepte als auch die Eingabedaten sind mit gewissen Unsicherheiten behaftet. Insbesondere die Quantifizierung der Unsicherheiten der Modellkonzepte ist aber sehr schwierig.
- Die Variabilität der Inputparameter kann durch eine stochastische Modellierung berücksichtigt werden [z.B. Wu und Workman, 1999; Zacharias et al., 1999; Loll und Moldrup, 2000].
- Es ist praktisch nie möglich, alle benötigten Parameter unabhängig zu bestimmen. Die Schätzung dieser Parameter durch die Modellierer führt bei allen Modellen zu einer subjektiven Komponente bei der Simulation von Experimenten. Dies erschwert den Vergleich verschiedener Modellkonzepte.

7 Schlussfolgerungen

Im Kapitel 2 wurden sechs Fragen gestellt, welche nach Möglichkeit beantwortet werden sollten. Die Verlagerungsgeschwindigkeit (Fragen 2 und 4) hängt stark vom Wasserfliessregime ab, das heisst von den hydraulischen Eigenschaften des Bodens. Kapitel 7.1. fasst Probleme und mögliche Lösungsansätze bei der Ermittlung des hydraulischen Verhaltens von Böden zusammen. Die Verlagerungsgeschwindigkeit wird zudem auch durch die Sorption beeinflusst, wobei das Ausmass der Sorption je nach Fliessregime unterschiedlich sein kann (vgl. 7.2). Kapitel 7.3 weist auf die Probleme bei der Bestimmung von Abbauraten (Frage 3) hin. Faktoren, die die verschiedenen Prozesse beeinflussen (Frage 5), werden in allen drei Kapiteln erwähnt, ebenso wie Hinweise auf möglicherweise geeignete Modelle (Frage 6). Die Antwort auf die primäre Frage 1 zur Anwendung von PSM in Grundwasserschutzzonen ergibt sich aus den Antworten zu den anderen Fragen, wie dies in Kapitel 7.4 zusammengefasst wird.

7.1 Hydraulische Eigenschaften von Böden

Das Sickerverhalten von Wasser in Böden wird beeinflusst von Bodenstruktur, Wurzeldichte, Oberflächenbearbeitung, Anfangswassergehalt und Beregnungsintensität (vgl. Abschnitte 5.4 und 6.4). Diese Faktoren sind bis zu einem gewissen Grad gekoppelt und variieren unter natürlichen Verhältnissen im Jahresverlauf. Dies macht es praktisch unmöglich, die Verteilung von Verlagerungszeiten auf eine einfache Art grob abzuschätzen. Zur Bestimmung der Verlagerungsgeschwindigkeiten, d.h. zur Vorhersage des Transportverhaltens, sind relativ komplexe Modelle mit vielen Eingabeparametern notwendig. Die Beantwortung von Frage 2 erfordert zunächst die Wahl eines geeigneten Modelles und dann die Bestimmung der benötigten hydraulischen Parameter. Die Zahl der angebotenen Modelle ist recht gross, wobei sich die Modelle hinsichtlich der abgebildeten Prozesse sowie Zahl und Art der benötigten Parameter stark unterscheiden. Welche Modelle geeignet sind und wie die Parameter bestimmt werden, wird in den folgenden zwei Abschnitten dargestellt.

Für die Stoffverlagerung entscheidend ist die Heterogenität der Fliessfelder im Boden. Bevorzugte Fliessbahnen treten oft auf bei lehmigen Böden, schlechter Benetzbarkeit, hohen Niederschlagsintensitäten, unter stauenden Schichten oder bei Präsenz von Makrostrukturen (Wurmlöcher, Risse, Wurzelkanäle). Eine Umsetzung dieser Erkenntnisse in Modellkonzepte ist schwierig. Es wird deshalb versucht, die Heterogenität des Wasserflusses beispielsweise durch mehrere, parallele Fliessbereiche (quasi-mehrdimensional) oder mit heterogenen, korrelierten Parameterfeldern (mehrdimensional) zu berücksichtigen. Modellvergleiche anhand von Daten mobiler *Tracer* oder von PSM haben mehrheitlich gezeigt, dass diejenigen Modelle im Vorteil sind, welche die Heterogenität bzw. den präferenziellen Fluss auf die eine oder andere Art beschreiben können. Beispiele für solche Modelle sind MACRO, SOIL, LEACHM oder HYDRUS-2D. Wie wichtig das Phänomen präferenzieller Fluss im einzelnen ist, hängt natürlich ab vom Bodentyp, vom Systemzustand und von der Beobachtungsperiode.

Ist ein Modell gewählt, liegt das Problem, das hydraulische Verhalten zu prognostizieren, bei den benötigten Parameterwerten. Diese lassen sich kaum unabhängig, sondern nur durch aufwändige Experimente bestimmen. Gerade jene Modelle, die heterogenen Wasserfluss abbilden, erfordern relativ viele Parameter. Hilfe – vor allem für «screening tests» – bieten Datenbanken, welche für bestimmte Böden als typisch erachtete hydraulische Parameterwerte enthalten und mit den Simulationsmodellen gekoppelt sind (z.B. *MACRO-DB*). Experimente zur lokalen Kalibrierung sind auf jeden Fall nützlich und erhöhen die Zuverlässigkeit von Voraussagen. Eine Kalibrierung des hydraulischen Teils eines Modells über relativ kurze Zeiträume oder kleine Gebiete kann logischerweise nur konditionale Parameterwerte liefern, die lediglich unter ähnlichen Bedingungen, d.h. für ähnliche Ereignisse, gültig sind. Bei mehrjährigen Kalibrierungen besteht andererseits die Gefahr, dass aufgrund einer geringen Sensitivität die Situation für Einzelereignisse nicht korrekt erfasst wird.

7.2 Sorptionsprozesse

Sorption ist eine Wechselwirkung zwischen PSM und Boden, welche die Verlangsamungsgeschwindigkeit des Stoffes in der Regel reduziert. Die effektive Retardation, das heisst, die Wirksamkeit der Sorption als Verzögerungsmechanismus, hängt unter anderem vom Fließregime ab. In den meisten Modellen (Ausnahmen: *HYDRUS-1D*, *HYDRUS-2D* und *LEACHM*) wird lediglich Gleichgewichtssorption berücksichtigt, d.h. eine Sorption unabhängig von der Kontaktzeit. Bei mehreren Fließdomänen werden die Kapazitäten in der Regel gemäss dem jeweiligen Anteil am Gesamtporenvolumen zugeordnet. Solange lokales Sorptionsgleichgewicht vorausgesetzt wird, sind die berechneten Mobilitäten für verschiedene PSM umgekehrt proportional zu den Retardationskoeffizienten. Dies wurde in einigen Feldversuchen auch tatsächlich beobachtet, wobei zum Teil die Werte – nicht aber die Rangfolge – der Retardationsfaktoren angepasst werden mussten. In anderen Feldversuchen waren hingegen verschiedene PSM trotz unterschiedlicher potenzieller Sorptionskapazitäten gleich mobil. Das deutet auf kinetische Effekte z.B. wegen schnellem Wasserfluss hin. Beobachtungen dieser Art lassen sich nur mit einem Modell nachvollziehen, welches Sorption als zeitabhängigen Prozess betrachtet, wie z.B. *LEACHM*, oder durch Verwendung von lokal unterschiedlichen Sorptionskapazitäten.

7.3 Abbauprozesse

Eine unabhängige Bestimmung von Abbauraten für Feldversuche scheint schwierig. Die Übertragung von Labordaten auf Feldverhältnisse ist problematisch, da der Abbau von einer Reihe von Bedingungen abhängt, die nur schwer zu erfassen sind (z.B. lokale Redoxpotenziale, Substratangebot, Anfangspopulationsdichten von Mikroorganismen). Im Feld beobachtete Raten können durchaus auch grösser sein als die aufgrund von Laborexperimenten erwarteten. Dass Abbauraten oder auch Sorptionskonstanten, wie die hydraulischen Parameter, eine räumliche Heterogeni-

tät aufweisen, ist sehr wahrscheinlich und teilweise auch dokumentiert [z.B. Chen und Wagenet, 1997; Oliveira et al., 1999]. Ausser in einigen Screening-Modellen [z.B. van der Zee und Boesten, 1991, Loll und Moldrup, 2000] ist diese Erkenntnis in Modellkonzepten jedoch kaum umgesetzt. In diesem Bereich besteht sicher noch Handlungsbedarf. Es wäre insbesondere interessant zu untersuchen, ob oder wie weit eine Kopplung zwischen (lokalen) hydraulischen, Sorptions- und biologischen Eigenschaften besteht.

7.4 Anwendung von PSM in Grundwasserschutzzonen

Die Anwendung von PSM in der engeren Grundwasserschutzzone birgt ganz klar die Gefahr in sich, dass das Trinkwasser – quasi durch einen Kurzschluss zwischen Eintrag und Fassung – erheblich mit PSM belastet wird. Schnelle Transportvorgänge, bei welchen Sorption und Abbau und somit die Filter- und Reaktorwirkung des Bodens typischerweise kaum zum Tragen kommen, finden in den meisten natürlichen Böden statt. Eine Eingrenzung auf Risikofaktoren wie Bodentyp, aktueller Wassergehalt oder zu erwartende Niederschläge ist beim heutigen Kenntnisstand leider noch kaum möglich. Die Anwendung von PSM ausserhalb der Grundwasserschutzzone scheint weniger problematisch, da bei einem Eintrag von PSM ins Grundwasser auf dem Weg zur Fassung sowohl Verdünnung als auch Abbau wesentlich wirksamer die Konzentrationen sowie die eingetragenen Mengen reduzieren können.

7.5 Ausblick

Je komplexer ein Modell, desto differenzierter kann es gewisse Prozesse beschreiben; allerdings steigt damit in der Regel auch die Zahl der Parameter und desto schwieriger wird deren Bestimmung. Einfache Modelle, die nur sehr wenige Inputdaten benötigen, aber bestimmte Prozesse nicht abbilden, haben dagegen nur einen begrenzten Anwendungsbereich. Der Unsicherheit der Parameter im ersten Fall steht die Unsicherheit des Modellansatzes im zweiten Fall gegenüber. Für Untersuchungen im Stil von «screening tests» bieten nur die komplexeren Modelle die Möglichkeit, verschiedene Szenarien durch Parametervariation zu vergleichen. Für beide Modelltypen ist die Kalibrierung für einen bestimmten Fall wie auch die Validierung schwierig. Armstrong et al. [1996], Thorsen et al. [1998] und Vancloster et al. [2000] schlagen deshalb eine schrittweise Kalibrierung bzw. Validierung anhand von verschiedenen experimentellen Daten zur Hydrologie und zum Pestizidaustrag vor. Eine unabhängige Parameterbestimmung für ein Testgebiet ist in den meisten Fällen unmöglich. Diese ist aber nicht in jedem Fall nötig, da bereits einzelne, z.B. hydrologische Messreihen vorliegen. Langzeitstudien des hydraulischen Verhaltens über Gebiete mit repräsentativen Bodeneigenschaften oder speziell um Grundwasserbrunnen könnten sehr hilfreich sein. Eine erste Phase liesse eine Kalibrierung zu, während spätere Phasen für die Validierung und die laufende Rekalibrierung verwendet werden können. Weitere Prognosen zu Wasserfluss und Stofftransport für ein Gebiet würden dadurch immer zuverlässiger.

8 Literatur

- ABBASPOUR, K. C. and SCHULIN, R. 1996. *Two-dimensional flow and transport in unsaturated soils*. Federal Office of Environment, Forests and Landscape (FOEFL/ BUWAL), Bern, Switzerland.
- AEBY, P., FORRER, J., STEINMEIER, C., and FLÜHLER, H. 1997. *Image analysis for determination of dye tracer concentrations in sand columns*. Soil Sci. Soc. Am. J. 61:33–35.
- ARMSTRONG, A.C., PORTWOOD, A.M., LEEDSHARRISON, P.B., HARRIS, G.L., and CATT, J.A. 1996. *The validation of pesticide leaching models*. Pesticide Science 48:47–55.
- BELTMAN, W.H.J., BOESTEN, J.J.T.I., and VAN DER ZEE, S.E.A.T.M. 1995. *Analytical modelling of pesticide transport from the soil surface to a drinking water well*. J. Hydrology 169:209–228.
- BERGSTROM L. 1996. *Model predictions and field measurements of chlorsulfuron leaching under non-steady-state flow conditions*. Pesticide Science 48:37–45.
- BOESTEN, J.J.T.I., and GOTTESBUREN, B. 2000. *Testing PESTLA using two modellers for Bentazone and Ethoprophos in a sandy soil*. Agricultural Water Management 44:283–305.
- BROWN, C.D., BAER, U., GUTHER, P., TREVISAN, M., and WALKER, A. 1996. *Ring test with the models LEACHP, PRZM-2 and VARLEACH – Variability between model users in prediction of pesticide leaching using a standard data set*. Pesticide Science 47:249–258.
- CHEN, W., and WAGENET, R.J. 1995. *Solute transport in porous media with sorption-site heterogeneity*. Environ. Sci. Technol. 29:2725–2734.
- COREY, J.C. 1968. *Evaluation of dyes for tracing water movement in acid soils*. Soil Science 106:182–187.
- DEKKER, L.W., and RITSEMA, C.J. 1994. *How water moves in a water repellent sandy soil*. 1. Potential and actual water repellency. Water Resour. Res. 30:2507–2517.
- FLEMING J.B., and BUTTERS, G.L. 1995. *Bromide transport detection in tilled and nontilled soil – Solution samplers vs. soil cores*. Soil Sci. Soc. Am. J. 59:1207–1216.
- FLÜHLER, H., DURNER, W., and FLURY, M. 1996. *Lateral solute mixing processes – A key for understanding field-scale transport of water and solutes*. Geoderma 70:165–183.
- FLURY, M. 1996. *Experimental evidence of transport of pesticides through field soils – A review*. J. Environ. Qual. 25:25–45.
- FLURY, M. and FLÜHLER, H. 1995. *Tracer characteristics of Brilliant Blue FCF*. Soil Sci. Soc. Am. J. 59:22–27.
- FLURY, M., FLÜHLER, H., JURY, W. A., and LEUENBERGER, J. 1994. *Susceptibility of soils to preferential flow of water: A field study*. Water Resour. Res. 30:1945–1954.
- FLURY, M., LEUENBERGER, J., STUDER, B., and FLÜHLER, H. 1995. *Transport of anions and herbicides in a loamy and a sandy field soil*. Water Resour. Res. 31:823–835.
- FLURY, M., YATES, M.V., and JURY, W.A. 1999. *Numerical analysis of the effect of the lower boundary condition on solute transport in lysimeters*. Soil Sci. Soc. Am. J. 63:1493–1499.
- FORRER, I., KASTEEL, R., FLURY, M., and FLÜHLER, H. 1999. *Longitudinal and lateral dispersion in an unsaturated field soil*. Water Resour. Res. 35:3049–3060.

- FORRER, I., PAPRITZ, A., KASTEEL, R., FLÜHLER, H., and LUCA, D. 2000. *Quantifying dye tracers in soil profiles by image processing*. Europ. J. Soil Sci. 51:313–322.
- FOUSSEREAU, X.V., and GRAHAM, W.D. 1997. *Field-scale subsurface transport of surface-applied Bromide in a southwest florida citrus grove*. Soil & Crop Science Society of Florida Proceedings 56:71–79.
- GELHAR, L.W., MANTOGLOU, A., WELTY, C., and REHFELDT, K.R. 1985. *A review of field-scale physical solute transport processes in saturated and unsaturated porous media*. Electric Power Research Institute EPRI EA-4190 Project 2485–5, 116 pp.
- GIMMI, TH., KRETZSCHMAR, R., PAPRITZ, A., und FLÜHLER, H. 1997. *Wasserbewegung und Bodenstruktur: Eine Fahrt ins Blaue*. Exkursionsführer DBG Jahrestagung in Konstanz. Mitteilungen der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft 82:169–186.
- GRANITZA, E., JENE, B., and FEYERABEND, M. 1999. *Isoproturon: Simulation of a field experiment on a drained loamy soil using the MACRO model*. In: Human and environmental exposure to xenobiotics: Proceedings of the XI symposium on pesticide chemistry, September 11–15, 1999, Cremona, Italia, ed. by A.A.M. Del Re et al., Pavia La Gogliardica Pavese, p. 321–324.
- GUO, L., JURY, W.A., WAGENET, R.J., and FLURY, M. 2000. *Dependence of pesticide degradation on sorption: nonequilibrium model and application to soil reactors*. J. Contam. Hydrology 43:45–62.
- HAGEDORN, F., MOHN, J., SCHLEPPI, P., and FLÜHLER, H. 1999. *The role of rapid flow paths for nitrogen transformation in a forest soil: A field study with micro suction cups*. Soil Sci. Soc. Am. J. 63:1915–1923.
- HAGGERTY, R., and GORELICK, S.M. 1998. *Modeling mass transfer processes in soil columns with pore-scale heterogeneity*. Soil Sci. Soc. Am. J. 62:62–74.
- HEPPELL, C.M., BURT, T.P., WILLIAMS, R.J., and HARIA, A.H. 1999. *The influence of hydrological pathways on the transport of the herbicide Isoproturon through an underdrained clay soil*. Water Science and Technology 39:77–84.
- JABRO, J.D., JEMISON, J.M., FOX, R.H., and FRITTON, D.D. 1994. *Predicting Bromide leaching under field conditions using SLIM and MACRO*. Soil Science 157:215–223.
- JARVIS, N.J., BROWN, C.D., and GRANITZA, E. 2000. *Sources of error in model predictions of pesticide leaching: A case study using the MACRO model*. Agricultural Water Management 44:247–262.
- JENE, B., ERZGRÄBER, B., FEYERABEND, M., FENT, G., and KUBIAK, R. 1999. *Comparison of Bromide and Benazolin transport in the undisturbed field with simulations by the computer models PELMO and MACRO*. In: Human and environmental exposure to xenobiotics: Proceedings of the XI symposium on pesticide chemistry, September 11–15, 1999, Cremona, Italia, ed. by A.A.M. Del Re et al., Pavia La Gogliardica Pavese, p. 131–142.
- JURY, W.A., and K. ROTH. 1990. *Transfer functions and solute movement through soil: Theory and applications*. Birkhäuser Verlag, Basel, Switzerland.
- KLADIVKO, E.J., VAN SCOYOC, G.E., MONKE, E.J., OATES, K.M., and PASK, W. 1991. *Pesticide and nutrient movement into subsurface tile drains on a silt loam soil in Indiana*. J. Environ. Qual. 20:264–270.

- KLADIVKO, E.J., GROCHULSKA, J., TURCO, R.F., VAN SCOYOC, G.E., and EIGEL, J.D. 1999. *Pesticide and nitrate transport into subsurface tile drains of different spacings*. J. Environ. Qual. 28:997–1004.
- KLEIN, M., HOSANG, J., SCHAFER, H., ERZGRÄBER, B., and RESSELER, H. 2000. *Comparing and evaluating pesticide leaching models – Results of simulations with PELMO*. Agricultural Water Management 44:263–281.
- KUNG, K.J.S. 1993. *Laboratory observation of funnel flow mechanism and its influence on solute transport*. J. Environ. Qual. 22:91–102.
- LARSSON, M.H., and JARVIS, N.J. 1999. *Evaluation of a dual-porosity model to predict field-scale solute transport in a macroporous soil*. Journal of Hydrology 215:153–171.
- LARSSON, M.H., and JARVIS, N.J. 2000. *Quantifying interactions between compound properties and macropore flow effects on pesticide leaching*. Pest Management Science 56:133–141.
- LARSSON, M.H., JARVIS, N.J., TORSTENSSON, G., and KASTEEL, R. 1999. *Quantifying the impact of preferential flow on solute transport to tile drains in a sandy field soil*. Journal of Hydrology 215:116–134.
- LENNARTZ, B., MICHAELSEN, J., WICHTMANN, W., and WIDMOSER, P. 1999. *Time variance analysis of preferential solute movement at a tile-drained field site*. Soil Sci. Soc. Am. J. 63:39–47.
- LOLL, P., and MOLDRUP, P. 2000. *Stochastic analyses of field-scale pesticide leaching risk as influenced by spatial variability in physical and biochemical parameters*. Water Resour. Res. 36:959–970.
- MACINTYRE, W.G., ANTORTH, C.P., STAUFFER, T.B., and YOUNG, R.G. 1998. *Heterogeneity of sorption and transport-related properties in a sand-gravel aquifer at Columbus, Mississippi*. J. Contam. Hydrology 31:257–274.
- MUELLER, T.C. 1994. *Comparison of PRZM computer model predictions with field lysimeter data for Dichlorprop and Bentazon leaching*. J. Environm. Science & Health Part A-Environm. Science & Engineering 29:1183–1195.
- OLIVEIRA, R.S., KOSKINEN, W.C., FERREIRA, F.A., KHAKURAL, B.R., MULLA, D.J., and ROBERT, P.J. 1999. *Spatial variability of Imazethapyr sorption in soil*. Weed Science 47:243–248.
- PETERS, B. 1997. *Untersuchungen und Berechnungen zur Abschätzung der Grundwassergefährdung durch PSM-Einträge an ausgewählten Standorten*. Berichte aus dem IWW Rheinisch-Westfälisches Institut für Wasserforschung, Band 20, Mülheim an der Ruhr, Deutschland.
- PICCOLO, A., CONTE, P., SCHEUNERT, I., and PACI, M. 1998. *Atrazine interactions with soil humic substances of different molecular structure*. J. Environ. Qual. 27:1324–1333.
- RITSEMA, C.J., and DEKKER, L.W. 1995. *Distribution flow: A general process in the top layer of water repellent soils*. Water Resour. Res. 31:1187–1200.
- SAXENA, R.K., JARVIS, N.J., and BERGSTROM, L. 1994. *Interpreting non-steady state tracer breakthrough experiments in sand and clay soils using a dual-porosity model*. J. Hydrology 162:279–298.
- SCHOEN, R., GAUDET, J.P., and BARIAC, T. 1999. *Preferential flow and solute transport in a large lysimeter, under controlled boundary conditions*. J. Hydrology 215:70–81.

- SIMMONDS, L.P., and NORTCLIFF, S. 1998. *Small scale variability in the flow of water and solutes, and implications for lysimeter studies of solute leaching*. Nutrient Cycling in Agroecosystems 50:65–75.
- SMETNIK, A., and FROST, M. 1999. *Simulation of C-14-Triadimenol leaching in lysimeter studies with PELMO*. In: Human and environmental exposure to xenobiotics: Proceedings of the XI symposium on pesticide chemistry, September 11–15, 1999, Cremona, Italia, ed. by A.A.M. Del Re et al., Pavia La Gogliardica Pavese, p. 449–455.
- SMETTEM, K.R.J., and TRUDGILL, S.T. 1983. *An evaluation of some fluorescent and nonfluorescent dyes in the identification of water transmission routes in soils*. J. Soil Science 34:45–56.
- SPREAFICO, M. et al., 1992. *Hydrologischer Atlas der Schweiz*. Landeshydrologie und -geologie, Bern, Schweiz
- STAMM, Ch. 1997. *Rapid transport of Phosphorus in drained grassland soils*. Diss. ETH No. 12486, Examiner: H. Flühler, Co-examiner: R. Gächter (EAWAG).
- STAMM, Ch., FLÜHLER, H., GÄCHTER, R., LEUENBERGER, J., and WUNDERLI H. 1998. *Preferential transport of Phosphorus in drained grassland soils*. J. Environ. Qual. 27:515–522.
- THORSEN, M., JORGENSEN, P.R., FELDING, G., JACOBSEN, O.H., SPLIID, N., and REFSGAARD, J.C. 1998. *Evaluation of a stepwise procedure for comparative validation of pesticide leaching models*. J. Environ. Qual. 27:1183–1193.
- TOIBER-YASUR, I., ROSNER, M., HADAS, A., RUSSO, D., and YARON, B. 1999. *Leaching of Terbutylazine and Bromacil through field soils*. Water, Air, & Soil Pollution 113:319–335.
- TRAUB-EBERHARD, U., HENSCHER, K.-P., KÖRDEL, W., and KLEIN, W. 1995. *Influence of different field sites on pesticide movement into subsurface drains*. Pesticide Science 43:121–129.
- VAN DER ZEE, S.E.A.T.M., and BOESTEN, J.J.T.I. 1991. *Effects of soil heterogeneity on pesticide leaching to groundwater*. Water Resour. Res. 27:3051–3063.
- VANCLOOSTER, M., BOESTEN, J.J.T.I., TREVISAN, M., BROWN, C.D., CAPRI, E., EKLO, O.M., GOTTESBUREN, B., GOUY, V., and VAN DER LINDEN, A.M.A. 2000. *A European test of pesticide-leaching models: methodology and major recommendations*. Agricultural Water Management 44:1–19.
- WALKER, A., WELCH, S.J., MELACINI, A., and MOON, Y.H. 1996. *Evaluation of three pesticide leaching models with experimental data for Alachlor, Atrazine and Metribuzin*. Weed Research 36:37–47.
- WU, Q.J., and WORKMAN, S.R. 1999. *Stochastic simulation of pesticide transport in heterogeneous unsaturated fields*. J. Environ. Qual. 28:498–512.
- ZACHARIAS, S., HEATWOLE, C.D., PERSAUD, N., BRUGGEMAN, A.C., KUMAR, D., and SMITH, C.N. 1999. *Stochastic simulation of field-scale pesticide transport using OPUS and GLEAMS*. J. Environ. Qual. 28:411–423

Verzeichnisse

1 Abbildungsverzeichnis

Abb. 1: Relevante Prozesse bei der Verlagerung von reaktiven Stoffen im Bereich eines Grundwasserbrunnens.	15
Abb. 2: Typischer Versuchsaufbau für ein Infiltrationsexperiment. Eine Beregnungsapparatur verteilt Niederschlag und gegebenenfalls <i>Tracer</i> gleichmässig über die Versuchsfläche.	18
Abb. 3: In den «screening tests» von Flury et al. [1994] beobachtete Fliessmuster.	20
Abb. 4: a) Profilansicht der Verteilung eines blauen Farbtracers in einer Braunerde unter Kunstwiese nach Infiltration von 40 mm Lösung in 8 h. Wurmgänge und Risse waren leitende Strukturen. b) Horizontale Ansicht in 10 cm Tiefe im gleichen Experiment.	21
Abb. 5: Profilansicht der Farbtracerverteilung in einer leicht pseudovergleyten Braunerde unter Kunstwiese nach Infiltration von 35 mm in 7 h. Wurmgänge und Wurzeln waren stark am Wasserfluss beteiligt.	21
Abb. 6: Farbtracerverteilung in einer sandigen Braunerde über Schotter nach Infiltration von 36 mm in 7 h. Links war der Anfangswassergehalt im Oberboden sehr tief.	22
Abb. 7: Farbtracerverteilung in einem Pseudogley nach Infiltration von 36 mm in 7 h. a) Profilansicht des Oberbodens. b) Detailansicht aus etwa 70 cm Tiefe.	22
Abb. 8: Farbtracerverteilung in einer sandigen Braunerde nach Infiltration von 50, 100 oder 200 mm mit einer Rate von 4 oder 24 mm d-1. Die Lösung wurde als 5 cm breite Linienquelle in der Mitte aufgegeben.	23
Abb. 9: Niederschlagsdaten der Stationen Winterthur TWI und Binningen der Jahre 97 bis 99. a) Histogramm der Tagesniederschläge in Winterthur 1997–1999. b) Box-Darstellungen für die beiden Standorte. c) Kumulative Häufigkeitsverteilungen. d) Niederschlagsintensitäten in Winterthur.	27

2 Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Übersicht über ereignisorientierte Experimente zur Verlagerung von Wasser und Stoffen in Feldböden.	20
Tabelle 2: Übersicht über Modelle zur Beschreibung der Verlagerung von Pflanzenschutzmitteln in Böden.	35